

ЛОКАЛИЗАЦИЯ АТОМОВ УГЛЕРОДА В КРИСТАЛЛИЧЕСКОЙ РЕШЕТКЕ НИКЕЛЯ

Н. А. Скакун, М. В. Ващенко

Национальный научный центр "Харьковский физико-технический институт", Харьков

Технику каналирования ускоренных протонов применяли для определения местоположения атомов углерода в кристаллической решетке никеля. В образцах никеля растворяли изотоп углерода – ^{13}C . При угловом сканировании вблизи кристаллографической оси $\langle 110 \rangle$ и плоскости (100) измеряли выход γ -квантов резонансной реакции $^{13}\text{C}(p, \gamma)^{14}\text{N}$ и обратно рассеянных на ядрах никеля протонов. Показано, что при концентрации 0,18 ат. % атомы углерода занимают октаэдрические междоузлия, а при концентрации 0,46 ат. % атомы углерода располагаются в тетраэдрических междоузлиях никеля.

Введение

Для изучения простейших дефектов кристаллической решетки в последние годы используют эффект каналирования ускоренных ионов. Преимуществом этого метода является возможность выделить один дефект, определить его структуру, ориентацию в решетке, геометрию [1]. С помощью техники каналирования может быть прямо установлена локализация (местоположение) в решетке атомов внедрения [2]. Эту задачу, как правило, решают путем измерения выхода обратно рассеянных ионов при ориентации пучка вдоль выделенных плотно упакованных атомами осевых или плоскостных направлений в кристалле. Когда масса атома, локализация которого определяется, меньше массы атома кристалла, измеряют выход излучений ядерной реакции. Для определения локализации атомов углерода в никеле в настоящей работе использовали реакцию радиационного захвата протонов ядрами изотопа углерода. Выбор сильного резонанса ядерной реакции $^{13}\text{C}(p, \gamma)^{14}\text{N}$ при энергии протонов 1,747 МэВ позволил обеспечить оптимальные условия проведения работы.

Цель работы состояла в экспериментальном определении местоположения атомов углерода при разных значениях его концентрации в монокристалле никеля. Экспериментальные данные о местоположении в металлах таких легких элементов, как углерод, азот и кислород, весьма ограничены.

Экспериментальные измерения

Диски толщиной $\approx 1,0$ мм вырезали из слитков монокристаллического никеля диаметром 8,5 мм примерно перпендикулярно (в пределах $\pm 2^\circ$) кристаллографическим осям $\langle 110 \rangle$ и $\langle 100 \rangle$. Для удаления механически нарушенного поверхностного слоя диски подвергались шлифованию и травлению. На поверхность этих образцов наносили разные навески порошка углерода, обогащенного до 96 % изотопом ^{13}C и отжигали в

вакууме при температуре 1150 °С. После отжига с поверхности удаляли следы остаточного углерода и при температуре 1220 °С подвергали гомогенизации распределение углерода. Затем образцы выдерживали в течение двух часов при температуре 850 °С, и подвергали закаливанию в воде. После закалки образцы шлифовали, полировали, травили, промывали в метиловом спирте и деионизованной воде. Поверхность образцов после такой обработки была зеркальной.

Образцы крепились в камере ядерных реакций на гониометре, который имел три угловые степени свободы. Для изменения области падения протонов на образец и перехода на необлученную протонами зону кристалла в гониометре предусмотрено параллельное смещение закрепленного образца в двух направлениях. Пучок протонов имел диаметр 0,8 мм и угловую расходимость $\leq 0,03^\circ$. Рассеянные под углом 156° протоны регистрировали поверхностно – барьерным детектором. Для устранения влияния случайного совпадения направления выхода рассеянных протонов с каким-нибудь из низкоиндексных кристаллографических направлений детектор стягивал большой телесный угол.

Для определения концентрации изотопа в образцах применяли мгновеннорadiационный ядерный метод анализа [3]. В качестве эталона использовали графит, в котором, как известно, содержится 1,11 % изотопа ^{13}C . Образцы исходного никеля, графита и никеля, насыщенного изотопом ^{13}C , помещали в камеру ядерных реакций, где облучали пучком протонов с энергией 1,750 МэВ и возбуждали ядерную реакцию $^{13}\text{C}(p, \gamma)^{14}\text{N}$. В процессе облучения регистрировали γ -спектры от каждого из образцов Ge(Li)-детектором. С учетом разных тормозных потерь энергии в никеле и графите по выходу γ -квантов реакции определяли содержание изотопа ^{13}C .

Однородность распределения изотопа по глубине в образцах определяли путем измерения функции возбуждения изолированного резонанса

ядерной реакции [4, 5]. Для этой цели использовали сильный, “узкий”, изолированный резонанс ядерной реакции $^{13}\text{C}(p, \gamma)^{14}\text{N}$, который возбуждается протонами при энергии 1,7466 МэВ, ($\sigma \approx 300$ мб, $\Gamma \approx 134$ эВ) [6].

На рис. 1 показана зависимость выхода реакции от энергии протонов (функция возбуждения реакции) для пучка, совмещенного с осью $\langle 110 \rangle$, и неориентированного пучка. Во втором случае, как следует из рисунка, выход остается постоянным в интервале 90 кэВ, что соответствует 1,03 мк. Измерения локализации углерода проводились в интервале глубин (0,14 - 0,26) мк, т. е. в пределах однородного распределения изотопа по глубине и статистически равновесного распределения плотности потока протонов в поперечной плоскости и вдоль канала [7].

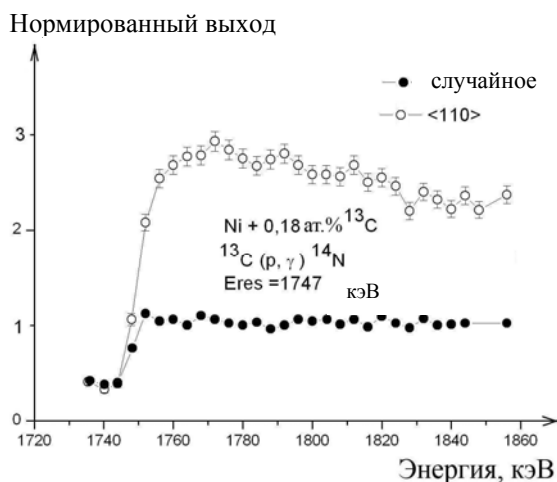


Рис. 1. Функция возбуждения реакции $^{13}\text{C}(p, \gamma)^{14}\text{N}$: \circ – направление импульса пучка совпадает с кристаллографической осью $\langle 110 \rangle$; \bullet – случайное.

Так как выход реакции регистрировали из области кристалла, примыкающей к зоне неравновесного распределения потока протонов в канале, на результаты измерений в ранее выполненной работе [8], как было установлено впоследствии, влияла углеводородная пленка, которая непрерывно образовывалась на поверхности образца в месте падения протонов. Это, в частности, приводило к “замыванию” структуры выхода реакции при угловом сканировании оси $\langle 110 \rangle$, рис. 4, а. С целью ослабления интенсивности формирования этой пленки кристалл экранировали охлажденной до температуры жидкого азота защитой. Для подавления выхода вторичных электронов при облучении кристалла протонами на экран подавался отрицательный потенциал.

На рис. 2 показаны спектры γ -квантов до и после возбуждения резонанса. При энергии, превышающей резонансное значение, наблюдается сильный выход γ -линий с энергией 9,17; 8,659; 8,148 МэВ, которые соответствуют распаду, возбужденного до энергии 9,1724 МэВ ядра ^{14}N . Заштрихованный участок спектра использовался при измерениях локализации углерода. На результаты измерений не исключено влияние пусть незначительных для металлов радиационных нарушений кристалла, которые с неизбежностью образуются в процессе его облучения протонами. Использование детектора NaJ(Tl) с размерами 150×100 мм позволило существенно увеличить эффективность регистрации γ -квантов и соответственно уменьшить флюэнс протонов на образец.

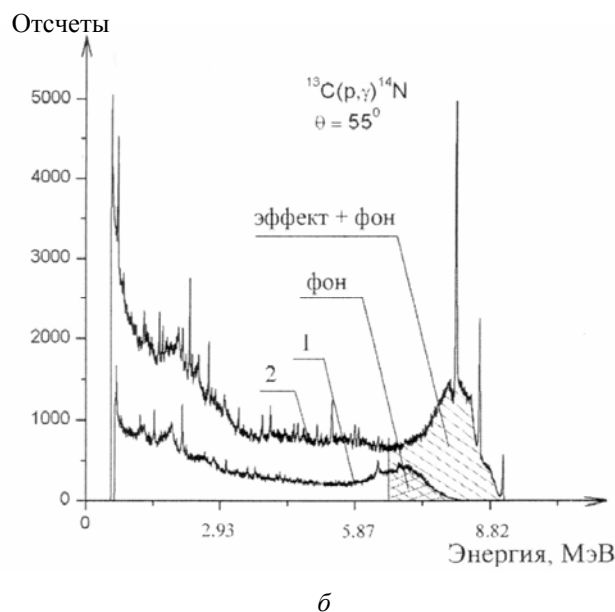
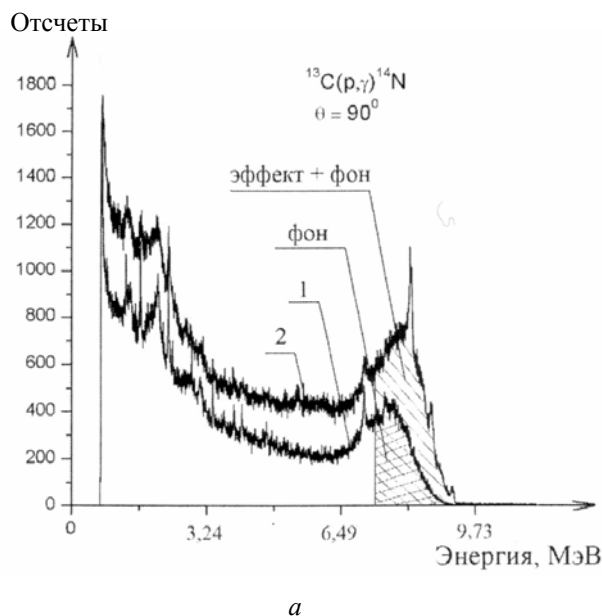


Рис. 2. Спектры выхода реакции $^{13}\text{C}(p, \gamma)^{14}\text{N}$, полученные с помощью NaJ(Tl)-детекторов (а) и Ge(Li)-детекторов (б) при энергии протонов 1,7456 МэВ (до резонанса - 1 и при энергии 1,748 МэВ (выше резонанса - 2).

Измеряли угловые зависимости выхода резонансной реакции $^{13}\text{C}(p, \gamma)^{14}\text{N}$ при каналировании протонов в окрестности кристаллографических осей $\langle 110 \rangle$, $\langle 100 \rangle$ и плоскостей (100), (110). Одновременно измеряли выход γ -квантов реакции и обратно рассеянных на ядрах никеля протонов. Выход реакции и рассеянных протонов регистрировали с одной и той же глубины, из области статистически равновесного распределения плотности потока протонов [9].

Результаты измерений и обсуждение

На рис. 1 показана функция возбуждения реакции, когда направление импульса пучка протонов совпадает с осью кристалла $\langle 110 \rangle$ ($\varphi = 0^\circ$). При достижении резонансного значения энергии протонов наблюдается резкое увеличение

выхода, которое в несколько раз превышает выход реакции в случае неориентированного пучка. Максимального значения выход реакции достигает при энергии 1,750 МэВ, а затем плавно уменьшается. Уменьшение выхода обусловлено деканалированием протонов на электронах, тепловых колебаниях атомов никеля и дефектах решетки. Значительное увеличение выхода при ориентации пучка вдоль этой оси по сравнению с выходом для неканализованных протонов однозначно свидетельствует о расположении атомов углерода за пределами атомных цепочек никеля.

На рис. 3, а показаны результаты измерения угловой зависимости выхода реакции и рассеянных протонов в кристалле, который содержал 0,18 ат. % углерода. Сканирование проводилось в окрестности оси $\langle 110 \rangle$ и плоскости (100).

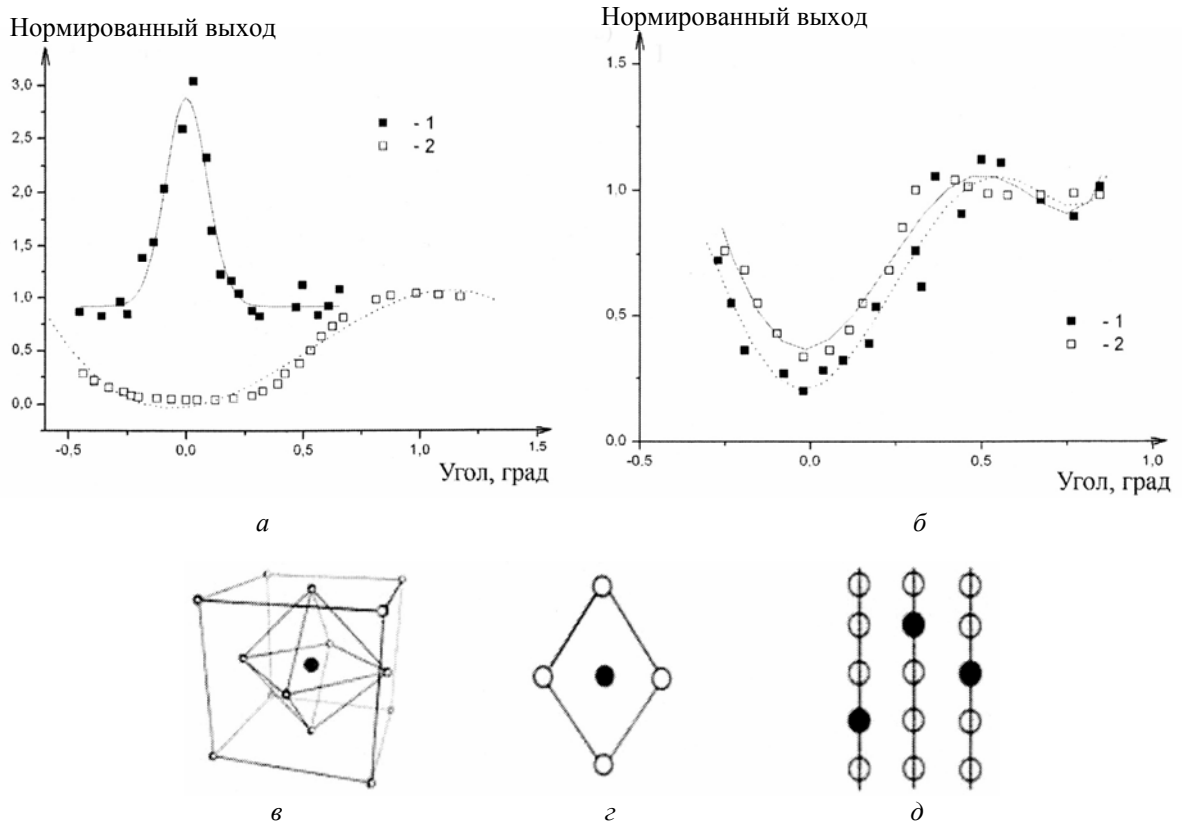


Рис. 3. Зависимость нормированного выхода γ -квантов реакции $^{13}\text{C}(p, \gamma)^{14}\text{N}$ (1) и рассеянных протонов (2) при угловом сканировании вблизи кристаллографической оси $\langle 110 \rangle$ (а) и плоскости (100) (б). Ниже показана локализация октаэдрического междоузлия (●) в ячейке ГЦК решетки (в) и его проекции в осевом канале $\langle 110 \rangle$ (г) и плоскости (100) (д); ○ – атомы никеля.

Отметим, что нормированный выход протонов при $\varphi = 0^\circ$ составлял всего 2,8 %, что свидетельствует о высоком качестве образцов кристалла. Угловая зависимость при сканировании вблизи оси $\langle 110 \rangle$ имеет резко выраженный узкий максимум. Отношение полуширины пика выхода реакции к полуширине выхода “лунки” рассеянных протонов составляет всего $\approx 0,21$. Это свидетельствует о расположении атомов углерода в центре канала $\langle 110 \rangle$.

По мере совмещения направления пучка и плоскости (100) наблюдается уменьшение выхода реакции и рассеянных протонов, которое достигает минимума при $\varphi = 0^\circ$ (см. рис. 3, б). Это свидетельствует о расположении проекции атомов углерода в плоскости (100).

Наиболее вероятными позициями внедрения атомов в кристаллах с ГЦК решеткой являются октаэдрические и тетраэдрические междоузлия

(пустоты). Проекция окта-междоузлий располагается только в центре канала $\langle 110 \rangle$, в то время как две проекции тетра-междоузлий располагаются у атомных цепочек этого канала, поэтому можно предположить, что сильный, узкий пик выхода реакции обусловлен расположением атомов углерода в окта-междоузлиях. Измерение выхода реакции при угловом сканировании плоскости (100) однозначно подтверждает окта-

эдрическое расположение атомов углерода (см. рис. 3, в), так как в случае расположения атомов углерода в тетра-пустотах следовало ожидать пик (рис. 4, б). Ширина и глубина лунки выхода реакции в этом случае несколько больше ширины и глубины лунки рассеянных протонов, что может быть обусловлено меньшей амплитудой тепловых колебаний атомов углерода по сравнению с амплитудой колебаний атомов никеля.

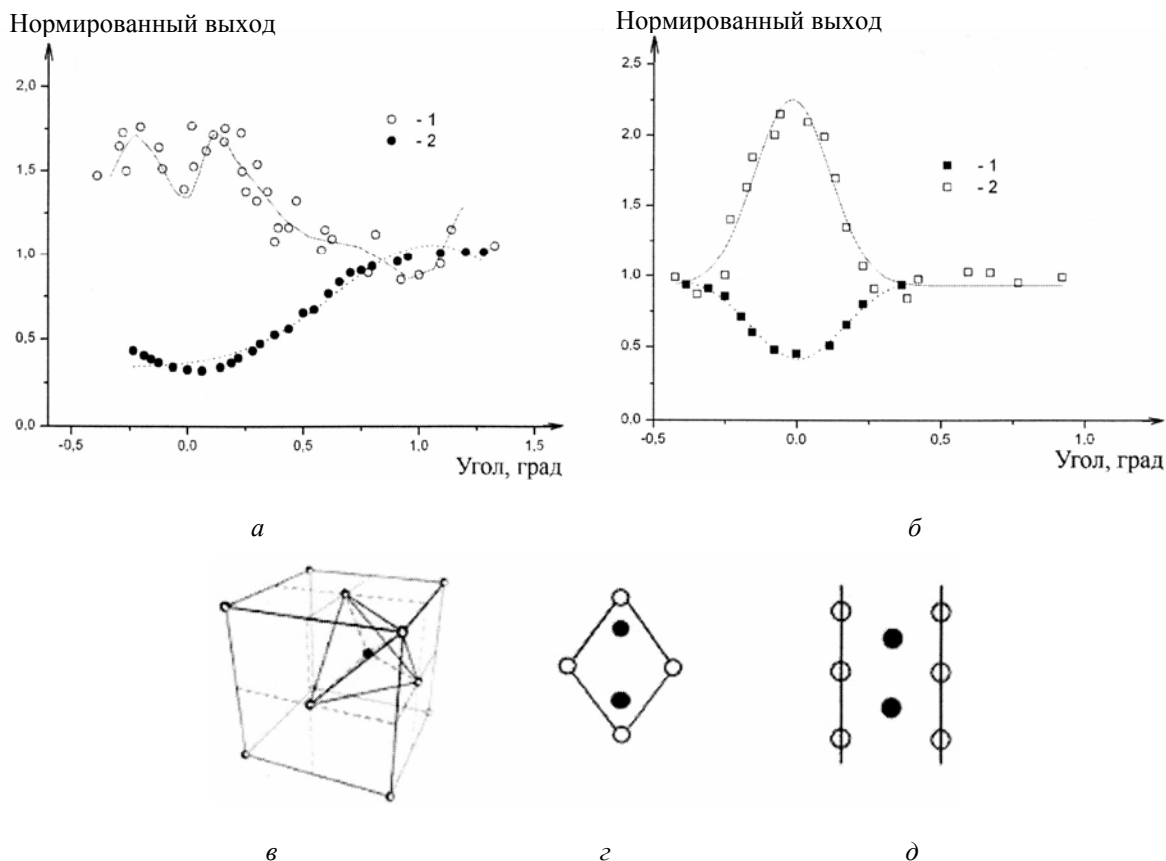


Рис. 4. Зависимость нормированного выхода γ -квантов реакции $^{13}\text{C}(p, \gamma)^{14}\text{N}$ (1) и рассеянных протонов (2) при угловом сканировании вблизи кристаллографической оси $\langle 110 \rangle$ (а) и плоскости (100) (б). Ниже показана локализация тетраэдрического междоузлия (●) в ячейке ГЦК решетки (в) и его проекции в канале $\langle 110 \rangle$ (г) и плоскости (100) (д); ○ – атомы никеля.

Результаты измерения локализации атомов ^{13}C в образцах, которые содержали 0,46 ат. % углерода качественно отличаются от представленных выше результатов для образцов с меньшим содержанием изотопа. Увеличение выхода рассеянных протонов (см. рис. 4, а), обусловлено деканализированием на примесных атомах и искажениях решетки. При угловом сканировании в окрестности оси $\langle 110 \rangle$ наблюдается значительное увеличение ширины пика выхода реакции и его расщепление вблизи угла $\varphi = 0^\circ$. Это исключает расположение атомов углерода в окта-междоузлиях.

При угловом сканировании плоскости (100), по мере уменьшения угла, нормированный выход реакции увеличивается и достигает макси-

мального значения под углом $\varphi = 0^\circ$. Такая зависимость может быть реализована только в случае размещения атомов ^{13}C в тетра-междоузлиях, так как эти пустоты располагаются в центре плоскостного канала (100) (см. рис. 4, д).

Таким образом, локализация атомов углерода вблизи предела его растворимости в никеле при температуре $\approx 30^\circ\text{C}$ зависит от концентрации углерода.

Выводы

С помощью техники каналирования в результате измерения выхода γ -квантов реакции $^{13}\text{C}(p, \gamma)^{14}\text{N}$ при угловом сканировании вблизи кристаллической оси $\langle 110 \rangle$ и плоскости (100) определено местоположение атомов углерода в

кристаллической решетке никеля. Показано, что атомы углерода при концентрации 0,18 ат. % занимают октаэдрические междоузлия, в то время как при концентрации 0,46 ат. % атомы углерода располагаются в тетраэдрических междоузлиях.

Растворимость углерода в никеле, в соответствии с [10], находится в пределах (0,2 - 0,3) ат. %. На одну ячейку в кристаллах с ГЦК решеткой приходится одно октаэдрическое и восемь тетраэдрических междоузлий. При содержании углерода, несколько превышающем пре-

дел растворимости, возможно энергетически более выгодно атомам изотопа располагаться в тетра-междоузлиях, так как в этом случае в решетке, вероятно, возникают меньшие напряжения.

Авторы выражают искреннюю признательность П. А. Светашову и В. А. Олейнику, за помощь при проведении измерений, В. С. Порятю благодарим за изготовление образцов и участие в подготовке эксперимента.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Swanson M. L. The study of lattice defects by channelling // Repts. Progr. Phys. - 1982. - Vol. 45, No. 1. - P. 47 - 93.
2. Anderson J. U., Andreason, Davis J. A., Uqgerhoj E. The use of channeling - effect techniques to locate interstitial foreign atoms in silicon // Radiation Effects. - 1971. - Vol. 7. - P. 25 - 32.
3. Скакун Н. А., Шершнев В. М. Применение методов ядерной физики и ускорителей для изучения состава, структуры и свойств твердых тел // Вопросы атомной науки и техники. Сер. "Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение". - 2003. № 6. - С. 3 - 15.
4. Skakun N. A., Shershnev V. M., Vashenko M.V. Studies of orientation effects in crystals by isolated resonances in nuclear reactions // Ukr. J. Phys. - 2006. - Vol. 51, No. 6. - P. 542 - 546.
5. Скакун Н. А., Харьков О.Н. Исследование распределения кислорода в окисных пленках с помощью ядерной реакции $^{18}\text{O}(p, \gamma)^{19}\text{F}$ // Атомная энергия. - 1969. - Т 25, вып. 4. - С. 351 - 352.
6. Ajzenberg-Selove F. Energy Levels of light Nuclei $A = 13 - 15$ // Nucl. Phys. - 1986. - Vol. A449, No. 1. - P. 71 - 99.
7. Gemmell D. S. Channeling and Related Effects in the Motion of Charged Particles Through Crystals // Rev. Mod. Phys. - 1974. - Vol. 46 (1). - P. 129 - 227.
8. Skakun N. A., Olejnik V. A. et al. Channeling study of carbon atom location in Re-C_x and Ni-C_x systems // Nucl. Instr. and Meth. - 1992. - Vol. B67. - P. 199 - 201.
9. Smulders P. J. M., Boerma D. O. Computers simulation of channeling in single crystals // Nucl. Instr. and Meth. - 1987. - Vol. B29. - P. 471 - 489.
10. Фромм Е., Гебхардт Е. Углерод в никеле // Газы и углерод в металлах / Пер. с нем. В. Г. Бурцева. - М.: Металлургия, 1980. - С. 593 - 594.

ЛОКАЛІЗАЦІЯ АТОМІВ ВУГЛЕЦЮ В КРИСТАЛІЧНІЙ РЕШІТЦІ НІКЕЛЮ

М. О. Скакун, М. В. Ващенко

Техніку каналювання прискорених протонів застосовували для визначення місця розташування атомів вуглецю в кристалічній решітці нікелю. У зразках нікелю розчиняли ізотоп вуглецю - ^{13}C . При кутовому скануванні поблизу кристалографічної осі $\langle 110 \rangle$ і площини (100) вимірювали вихід γ -квантів резонансної реакції $^{13}\text{C}(p, \gamma)^{14}\text{N}$ і розсіяних на ядрах нікелю протонів. Показано, що при концентрації 0,18 ат. % атоми вуглецю займають октаедричні порожнини, а при концентрації 0,46 ат. % атоми вуглецю розташовуються в тетраедричних порожнинах нікелю.

LOCALIZATION OF ATOMS OF CARBON IN THE CRYSTAL LATTICE OF NICKEL

N. A. Skakun, M. V. Vashchenko

Channeling of accelerated protons technique was used for determination of carbon atoms location in Ni crystal lattice. ^{13}C isotope was dissolved in Ni samples. At angular scan near crystal axis $\langle 110 \rangle$ and plane (100) γ -rays yield of resonance reaction $^{13}\text{C}(p, \gamma)^{14}\text{N}$ and backscattered on Ni nuclei protons was measured. It was shown that at concentration level 0.18 at. % carbon atoms located in octahedral voids, and at concentration level 0.46 at. % carbon atoms located in tetrahedral voids of nickel.

Поступила в редакцию 28.10.08,
после доработки - 15.12.08.