

94-333



сообщения
объединенного
института
ядерных
исследований
дубна

P14-94-333

А.Ю.Дидык

К ВОПРОСУ О МЕХАНИЗМЕ
РАДИАЦИОННОГО ВОЗДЕЙСТВИЯ
ТЯЖЕЛЫХ ИОНОВ НА МЕТАЛЛЫ
ПРИ ПОВЫШЕННЫХ ТЕМПЕРАТУРАХ

1994

1. ВВЕДЕНИЕ

При изучении радиационных эффектов в конструкционных материалах, уже находящих применение и новых, перспективных для ядерных и разрабатываемых термоядерных реакторов широко используются тяжелые ионы средних и промежуточных энергий^{/1/}. Такие ионы обладают рядом существенных преимуществ по сравнению с источниками нейтронов. В то же время следует отметить, что высокие удельные ионизационные потери энергии, превышающие 10 МэВ/мкм, могут давать определенный вклад в дефектообразование и изменять характер накопления радиационных дефектов (см., например, работу^{/2/}). Поэтому выяснение роли неупругих потерь энергии тяжелых ионов представляет собой важную и актуальную научно-исследовательскую проблему, решению которой посвящено значительное количество работ^{/3-4/}.

Цель настоящей работы - исследование воздействия тяжелых ионов на изменения структуры поверхности нержавеющей стали X18H10T, обладающей низкой температуропроводностью ($\alpha_1 = 0.053 \text{ см}^2/\text{с}$ при температуре $T > 900 \text{ К}$).

2. МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА (ОБЛУЧЕНИЯ)

Для исследований использовались образцы нержавеющей стали X18H10T в виде дисков с диаметром 3 мм и толщиной 200 мкм. Перед облучением образцы после механической и электролитической полировки были отожжены при температуре 700°C в течение часа в вакууме 10^{-3} Па.

Облучение образцов проводилось ионами ^{129}Xe с энергией $E = 124 \text{ МэВ}$ при плотности потока $F = (1.5-3) \times 10^{11}$ ион/см²с при температурах от 400°C до 650°C с шагом через 50°C. Вакуум при облучении образцов составлял 10^{-3} Па. Для уменьшения содержания масляных паров в зоне облучения перед мишенным устройством располагалась азотная ловушка с узким коллиматором. Мишенное устройство состояло из охлаждаемой проточной водой передней диафрагмы, за которой находилась подложка с облучаемыми образцами (по три образца в сборке), имеющая надежный тепловой

контакт с подогревным устройством. Мишенное устройство через изолирующие прокладки крепилось к охлаждаемому водой шестиграннику. Нагрев образцов осуществлялся электрическим током и за счет тепла, вносимого пучком ионов. Стабилизация температуры образцов производилась терморегулятором, точность поддержания температуры была $\Delta T = \pm 5^\circ\text{C}$.

После облучения образцы исследовались на сканирующем электронном микроскопе JSM-840 с рентгеновской приставкой для микроэлементного анализа.

3. РЕЗУЛЬТАТЫ

Электронно - микроскопические исследования образцов стали 18Н10Т показали, что во всем изученном температурном интервале от 400 до 650 $^\circ\text{C}$ происходит образование микроостристых структур. На рис.1.1 - 1.4 представлены фотографии облученной поверхности, сделанные при увеличении $\times 15000$ (рис.1.1) и $\times 10000$ (рис.1.2—1.4). Флюенс во всех случаях был одинаков и составлял $F_t = 5 \times 10^{15}$ ион/см 2 . Облучение образцов производилось при температурах 400 $^\circ\text{C}$ (рис.1.1), 500 $^\circ\text{C}$ (рис.1.2), 600 $^\circ\text{C}$ (рис.1.3) и 650 $^\circ\text{C}$ (рис.1.4). Как видно из рис.1, максимальная высота остристых структур наблюдается при температуре облучения $T = 400^\circ\text{C}$ (рис.1.1). По мере возрастания температуры поверхностная плотность остристых структур (N) уменьшается, что особенно хорошо заметно на рис.1.4. Кроме того, видно, что по границам зерен наблюдается отсутствие таких структур (менее отчетливое на рис.1.3 и более заметное на рис.1.4).

На рис.2 представлены фотографии поверхности облученных при температуре $T = 550^\circ\text{C}$ образцов нержавеющей стали при флюенсах $F_t = 10^{15}$ см $^{-2}$ (рис.2.1), $F_t = 2.5 \times 10^{15}$ см $^{-2}$ (рис.2.2) и $F_t = 2 \times 10^{16}$ см $^{-2}$ (рис.2.3). На рис.2.1 и рис.2.2 увеличение - $\times 20000$, а на рис.2.3 - $\times 5000$. Как видно, с увеличением флюенса происходит возрастание высоты остристых структур при относительно незаметном изменении их поверхностной плотности N . Следует обратить

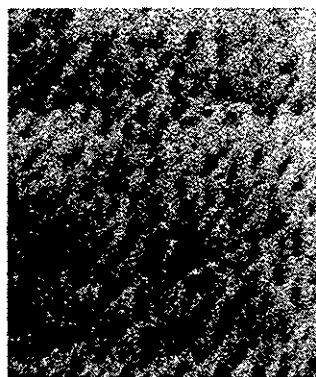


Рис.1.1

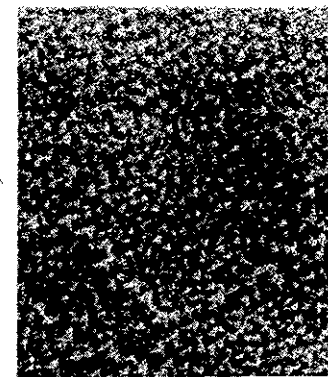


Рис.1.2

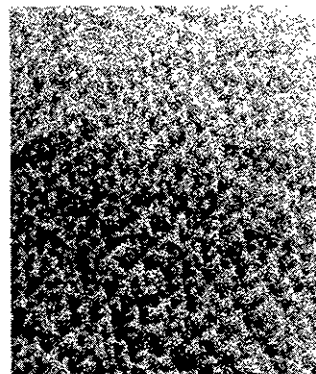


Рис.1.3

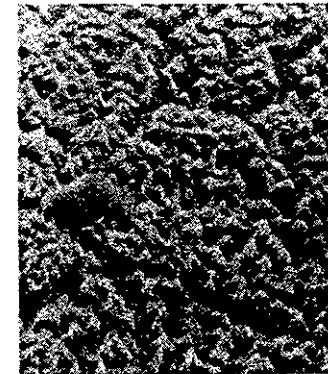


Рис.1.4

Рис.1. Фотографии поверхности стали X18H10T, облученной ионами ^{129}Xe с энергией 124 МэВ до флюенса $F_t = 5 \times 10^{15}$ ион/см 2 при температурах 400 $^\circ\text{C}$ (рис.1.1, увеличение $\times 15000$) и 500 $^\circ\text{C}$, 600 $^\circ\text{C}$, 650 $^\circ\text{C}$ (рис.1.2-1.4, увеличение $\times 10000$).

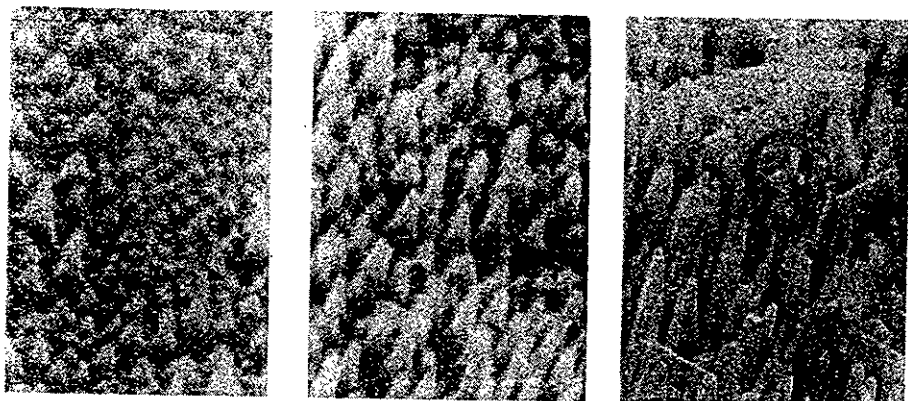


Рис.2.1

Рис.2.2

Рис.2.3

Рис.2. Фотографии поверхности стали X18N10T, облученной ионами ^{129}Xe с энергией 124 МэВ до флюенсов $F_t = 10^{15}$ ион/см 2 (рис.2.1, увеличение $\times 20000$), $F_t = 2.5 \times 10^{15}$ ион/см 2 (рис.2.2, увеличение $\times 20000$) и $F_t = 2 \times 10^{16}$ ион/см 2 (рис.2.3, увеличение $\times 5000$). Температура облучения 550°C

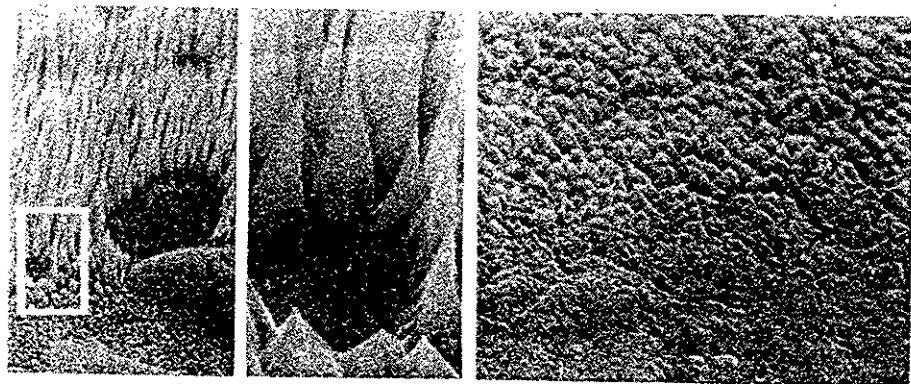


Рис.3.1

Рис.3.2

Рис.3. Фотографии переходных областей от зоны интенсивного роста острых структур (рис.3.1, увеличение $\times 1500$ в левой части и $\times 9000$ в правой части) к необлученной области (рис.3.2, увеличение $\times 5000$). Флюенс $F_t = 2 \times 10^{16}$ ион/см 2 , температура облучения 550°C

внимание на то, что форма острых структур по мере увеличения их характерной высоты (размеров) становится практически одинаковой. Это обстоятельство позволяет предположить, что данные структуры представляют собой зародыши кристаллической фазы.

Была также изучена переходная граница от облученной части образцов к необлученной. Фотографии представлены на рис.3. На рис.3.1 показана переходная область от зоны роста острых структур – эта область ограничивалась диафрагмой (увеличение в левой части фотографии $\times 1500$, в правой части – $\times 9000$) – к необлученной области (см. нижнюю часть рис.3.2, на котором также видны границы зерен, увеличение здесь $\times 5000$).

Интересные результаты были получены из микроэлементного рентгеновского анализа, выполненного на необлученной части образцов и на образце, фотография поверхности которого приведена на рис.2.3. Эти данные представлены в таблице.

ТАБЛИЦА

Состав	Необлученная область, ат. %	Облученная область, ат. % (рис.2.3)
Cr	17.188	10.711
Mn	0.507	0.492
Fe	72.817	83.237
Ni	9.637	5.341
Ti	0.403	0.218
Всего:	100.0	100.0

Следует отметить, что минимальный размер анализируемой области с использованием рентгеновского микроанализатора составляет 1 мкм^2 , поэтому в таких измерениях трудно гарантировать, что при возбуждении характеристических рентгеновских термов не регистрируется также излучение от "подложки", на которой образовались острые

структуры. Поэтому нельзя исключить, что в значениях атомных концентраций элементов (столбец 2 в таблице) имеется вклад от "подложки". Тем не менее из таблицы видно, что резко изменился элементный состав острых структур. Более чем на 10% возросло содержание железа, примерно на 7% для Cr и на 4% для Ni уменьшились их концентрации. Упало также содержание Ti. Заметим, что с учетом вклада "подложки" эти изменения должны только возрасти.

4. ОБСУЖДЕНИЕ

Можно предположить, что наблюдаемые эффекты обусловлены испарением материала мишени (стали X18H10T) за счет высоких удельных ионизационных потерь энергии тяжелых ионов ^{129}Xe $E_x = (dE/dx)_{i,n+1}$ и последующей конденсацией испаренных частиц на неоднородностях поверхности. Такое поведение можно объяснить двумя моделями: "термического" пика и кулоновского "взрыва", которые достаточно хорошо описаны в литературе^{/5/}.

Следует заметить, что оба эти механизма рассматриваются применительно к материалам типа диэлектрических, в которых низкая плотность свободных электронов, за счет чего относительно велико время передачи электронных возбуждений атомам решетки. То есть эти модели считаются плохо приемлемыми для металлов и сплавов.

В работе^{/6/} рассмотрен процесс образования в результате ионизации и электрон-электронной релаксации цилиндрической области перегретого электронного газа, температура которого T_e , с эффективным радиусом:

$$R_0 \cong \frac{I^2}{4\pi Z e^4 n} \quad (1)$$

где I - средний потенциал ионизации, Z - атомный номер, e - заряд электрона, n - плотность атомов вещества мишени. Средний потенциал ионизации атома можно приближенно представить в виде:

$$I \cong 13.5 Z \text{ эВ.} \quad (2)$$

Подставляя в (1) выражение (2) и учитывая, что $Z_{Fe} = 26$ и $n_{Fe} = 8.867 \times 10^{22} \text{ см}^3$, находим, что радиус зоны перегретого электронного газа имеет значение:

$$R_0 \cong 21 \text{ А.} \quad (3)$$

Время теплопередачи от перегретых электронов решетке τ_{e1} равно:

$$\tau_{e1} = \frac{R_0^2}{\alpha_e} \quad (4)$$

здесь R_0 - радиус энергетического трека, а α_e - коэффициент температуропроводности электронного газа, определяемый, в основном, длиной электрон-фононных соударений ($\alpha_e = K_e / C_e$, C_e - электронная теплоемкость).

После выравнивания электронной и решеточной температур начинается стадия относительно медленного теплового "расплывания" энергетического трека, характеризующаяся малой величиной коэффициента температуропроводности $\alpha_T = K_T / C_T$ (здесь K_T - электронная теплопроводность, а C_T - теплоемкость решетки). За время жизни трека в работе^{/6/} принято характерное время теплового расплывания τ_T :

$$\tau_T = \frac{R_0^2}{\alpha_T} \quad (5)$$

Тогда радиус трека определяется выражением:

$$R_C = \left(\frac{\gamma \alpha_T ((dE/dx)_{i,n+1})^{1/2}}{\beta (\pi \gamma)^{1/2}} \right)^{1/3} \quad (6)$$

где $\gamma = C_e / T_e$, β - коэффициент теплопередачи от электронов решетке. А температура в треке

$$T_c = \frac{(dE/dx)_{i,n+1}}{\pi R_C^2 C_i \rho_i} \quad (7)$$

ρ_i - плотность вещества мишени.

Для ряда металлов были оценены^{/6/} характерные параметры треков, например, для Fe:

$$R_c = 50 \text{ \AA}, \quad T_c = 6000 \text{ K},$$

$$\tau_{e,i} = 6 \times 10^{-14} \text{ c}, \quad \tau_T = 10^{-12} \text{ c}. \quad (8)$$

Величины неупругих потерь энергии тяжелых ионов $(dE/dx)_{in=1}$ ионов ^{129}Xe с энергией $E = 124 \text{ МэВ}$ в нержавеющей стали X18H10T получаем, используя компьютерную программу TRIM-90.

Параметры для стали X18H10T выбирались следующими:

$$n_{Fe} = 8.867 \times 10^{22} \text{ см}^{-3},$$

$$\rho_i = 8.05 \text{ г/см}^3,$$

$$C_i = 0.65 \text{ Дж/(г·K)},$$

$$K_i = 27.8 \text{ Вт/(м·K)},$$

$$\alpha_i = 5.3 \times 10^{-2} \text{ см}^2/\text{c}. \quad (9)$$

Отметим, что для дальнейших расчетов коэффициент теплопроводности K_i , который, в свою очередь, зависит от температуры, выбирался для температур, превышающих $T > 1100 \text{ K}$.

На основе вычисленных величин удельных потерь энергии с использованием выражений (6) и (7) и оценивая радиус трека значением радиуса для $\text{Fe}^{16/}$, получаем распределение температур в треке от глубины вдоль пробега ионов ^{129}Xe .

На рис. 4 приведены зависимости температуры и радиуса трека вдоль пробега ионов. Зависимость радиуса трека $R_c(x)$ от координаты x получена с учетом вычисленных значений $(dE/dx)_{in=1}$, которые, в свою очередь, зависят от x . На этом же рисунке штриховой линией показана температура плавления нержавеющей стали ($T_{m=1} = 1673 \text{ K}$).

Как видно из рис. 4, практически по всему пробегу температура в треке превышает в несколько раз температуру плавления. Кроме того, время жизни трека τ_T во много раз превышает время теплопередачи от электронов решетке $\tau_{e,i}$:

$$\tau_T \gg \tau_{e,i}. \quad (10)$$

поэтому процессы испарения материала из перегретой области вдоль трека вполне могут происходить за время теплопередачи от этой зоны к остальной матрице (за вре-

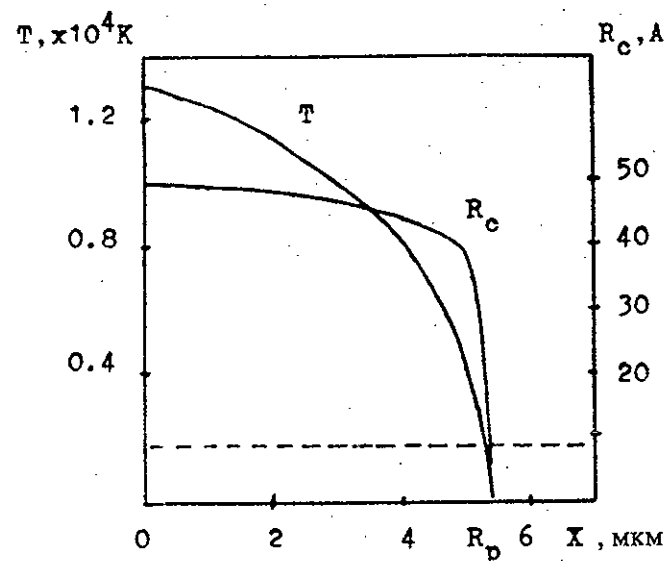


Рис. 4. Зависимости температуры и радиуса трека ионов ^{129}Xe от глубины в стали X18H10T. Штриховая линия - температура плавления

мена выравнивания температур до температуры образца при облучении $T = 673 - 973 \text{ K}$).

Следует заметить, что температура облучаемого образца как термодинамический параметр может быть введена для случая, когда процессы близки к равновесным, то есть когда существует кристаллическая решетка и связи атомов в решетке нарушены незначительно. В рассматриваемом случае, когда температура в треке $T \gg T_{m=1}$, само понятие температуры должно вводиться с осторожностью.

Рассмотрим, далее, более корректный, на наш взгляд, подход к описанию наблюдаемых эффектов.

В процессах испарения материала, например с использованием мощных электронных пучков, вводится понятие плотности критической мощности, при превышении которой

материал начинает интенсивно испаряться. Запишем эту величину с использованием следующего выражения:

$$P_{cr} = \frac{\alpha_i L_{\text{vap}} X_{\text{vap}} \rho_i}{R_{\text{vap}}^2} \quad (11)$$

здесь α_i - коэффициент температуропроводности (смотри (9)), L_{vap} - удельная теплота испарения, X_{vap} - глубина испаряемого слоя, R_{vap} - его радиус. Численное значение удельной теплоты испарения возьмем для железа, поскольку его содержание в стали X18N10T превышает 70%, тогда $L_{\text{vap}} = 6.267$ кДж/г.

Вычислим далее энергию тяжелого иона, теряемую им в объеме материала V в виде цилиндра с высотой X_{vap} и радиусом R_{vap} . Представим плотность ионизационных потерь энергии Φ в виде:

$$\frac{d^3E}{dx dR d\phi} = \frac{1}{\pi R^2} (dE/dx)_{in=1} \exp(-R^2/R_c^2). \quad (12)$$

То есть мы предполагаем, что радиальное распределение потерь энергии тяжелого иона имеет вид гауссова распределения. Тогда:

$$\begin{aligned} \Delta E &= \int_0^{X_{\text{vap}}} dx \int_0^{R_{\text{vap}}} R dR \int_0^{2\pi} d\phi \frac{d^3E}{dx dR d\phi} \cong \\ &\cong (dE/dx)_{in=1} X_{\text{vap}} (1 - \exp(-R_{\text{vap}}^2/R_c^2)). \quad (13) \end{aligned}$$

Тогда плотность вносимой тяжелым ионом мощности можно представить в виде:

$$P_{ion} = \frac{\Delta E}{\pi R_{\text{vap}}^2 t_{f1}}, \quad (14)$$

здесь t_{f1} - время пролета тяжелого иона слоя с глубиной X_{vap} :

$$t_{f1} = \frac{X_{\text{vap}}}{(2E/M)^{1/2}}, \quad (15)$$

где E и M - энергия и масса пролетающего иона соответственно.

Используя фотографии, приведенные на рис.1.1 и рис.2.3, можно приблизительно оценить количества вещества, находящегося в остриях структурах на площади $S = 0.01767$ см² (круг с радиусом 1.5 мм), откуда получить количество атомов N_s :

$$N_{s1} = 7.2 \times 10^{15} \text{ атомов, } (Ft)_{s1} = 8.83 \times 10^{13} \text{ ионов, } (16)$$

$$N_{s2} = 3.3 \times 10^{16} \text{ атомов, } (Ft)_{s2} = 3.53 \times 10^{14} \text{ ионов. } (17)$$

В выражениях (16) и (17) $(Ft)_s$ - число ионов, попавших на площадь S . Откуда можно получить количество атомов на один падающий ион, вылетевших из мишени и осевших на поверхности в остриях структурах:

$$\begin{aligned} K_{\text{vap}1} &= N_{s1} / (Ft)_{s1} = 81 \text{ атом/ион и} \\ K_{\text{vap}2} &= N_{s2} / (Ft)_{s2} = 93 \text{ атома/ион.} \quad (18) \end{aligned}$$

Считаем далее, что испарение материала мишени происходит из конуса с радиусом R_{vap} и высотой X_{vap} , полагая также $X_{\text{vap}} \cong 2 R_{\text{vap}}$, из соотношения

$$\Delta V_1 \cong \frac{\pi R_{\text{vap}}^2 X_{\text{vap}}}{3} = \frac{K_{\text{vap}}}{n_F}. \quad (19)$$

можно получить, что $R_{\text{vap}} \cong 8$ А, $X_{\text{vap}} \cong 16$ А. ΔV_1 - объем испаренного материала, приходящийся на один падающий ион.

Заметим, что данные оценки весьма приближенные, в частности, в них не учитывается доля испаренного материала, которая не сконденсировалась на облученной поверхности, а вылетела за ее пределы.

Сравнивая значение $R_{\text{vapor}} = 8 \text{ А}$ со значением радиуса зоны перегретого электронного газа (смотри выражение (3)), видим, что $R_{\text{vapor}} < R_0$.

Подставляя найденные значения R_{vapor} и X_{vapor} в выражение (11), находим величину плотности критической мощности:

$$P_{cr} \cong 6.69 \times 10^{10} \text{ Вт/см}^2. \quad (20)$$

Время пролета иона ксенона с энергией $E = 124 \text{ МэВ}$ и массой $M = 129 \text{ а.е.м.}$ слоя с толщиной X_{vapor} равно $t_{i1} = 1.18 \times 10^{-16} \text{ с.}$ Это время значительно меньше времени τ_{oi} . Тогда выделяемая тяжелым ионом ^{129}Xe в объеме V плотность мощности:

$$P_{x_0} = 9.2 \times 10^{13} \text{ Вт/см}^2. \quad (21)$$

Как видно из сравнения выражений (20) и (21), $P_{ion} \gg P_{cr}$. Поэтому процессы испарения материала могут идти весьма эффективно.

5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

На основании выполненных расчетов можно сделать вывод о том, что при соблюдении сформулированных выше условий ($T > T_{mol}$ и $P_{ion} > P_{cr}$) происходят процессы испарения материала мишени с последующей конденсацией на неоднородностях поверхности.

Представляет интерес привести также аналогичные расчеты, выполненные для случая монокристаллов алмаза, облученных тяжелыми ионами ^{40}Ar с энергией 25 МэВ и ^{129}Xe с энергией 124 МэВ ^{/7/}. В этом случае величина критической плотности мощности для алмаза равна $P_{cr} = 1.25 \times 10^{13} \text{ Вт/см}^2$, а выделенная плотность мощности: $P_{x_0} = 6.6 \times 10^{13} \text{ Вт/см}^2$ и $P_{Ar} = 1.9 \times 10^{13} \text{ Вт/см}^2$. Здесь были использованы экспериментальные данные по прямому измерению размеров испаренной области, полученные с помощью метода туннельной микроскопии и оказавшиеся равными $R_{\text{vapor}} = 15 \text{ А}$ ^{/8/}. Для ионов ^{129}Xe также наблюдалось образование структур

типа аморфных на поверхности облученного алмаза, в то время как для ионов ^{40}Ar структура поверхности была только значительно аморфизована.

На основании этих экспериментальных данных можно сделать вывод о том, что критерий для образования кратеров, обусловленных испарением материала мишени, можно представить в виде:

$$P_{ion} > P_{cr} \text{ при } T > T_{mol}. \quad (22)$$

Для случая нерелятивистских тяжелых ионов, когда $(V/c)^2 \ll 1$, и считая, что $(R_{\text{vapor}}/R_c)^2 \ll 1$, выражение (22) можно записать в упрощенной форме:

$$\approx L_{\text{vapor}} \rho_i < (dE/dx)_{ion} \left(\frac{R_{\text{vapor}}}{R_c} \right)^2 \frac{X_{\text{vapor}}}{(2E/M)^{1/2}}. \quad (23)$$

Кроме того, для проведения более корректных оценок, по сравнению с выполненными в данной работе, требуется выполнить экспериментальные исследования по прямому измерению размеров кратеров на поверхности облученной стали.

Альтернативный механизм распыления материала за счет высоких неупругих потерь энергии ионов описан в обзоре^{/9/}.

В заключение автор выражает признательность Скуратову В.А., Ореловичу О.Л. и Алтынову В.А. за помощь в проведении экспериментов и измерений.

ЛИТЕРАТУРА

1. И.В.АЛЬТОВСКИЙ. В кн.: Итоги науки и техники. Металловедение и термическая обработка. Том.21, стр.3-52, 1987.
2. S.A.Karamian, Yu.Ts.Oganessian, V.N.Bugrov. Nucl.Instr. and.Meth., B43, p.153, 1989.
3. A.Dunlop and D.Lesueur. In: Materials Science Forum, V.97-99, p.553-577, 1992.
4. P.Legrand, A.Dunlop, D.Lesueur, N.Lorenzelli, J.Morillo and S.Bouffard. In: Materials Science Forum, V.97-99, p.587-593, 1992.
5. R.L.Fleicher, P.B.Price, R.M.Walker. In: Nuclear Tracks in Solids, University of California Press, Berkeley, 1975.
6. А.А.Давыдов, А.И.Калиниченко. Вопросы атомной науки и техники. Сер.Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение. Вып.3/36/, стр.27-30, 1985.
7. А.Ю.Дидык, А.М.Зайцев, С.А.Карамян. Краткие сообщения ОИАИ №4[37]- 89, стр.44-49, 1989.
8. V.S.Varichenko et al. In: Abstracts of 4th European Conference on Diamond, Diamond - like and Related Materials, Portugal, 1993.
9. I.A.Baranov, Yu.V.Martynenko, S.O.Tsepelevich and Yu.N.Yavlinskii. Usp.Fiz.Nauk, v.156, p.477-511, 1988.

Рукопись поступила в издательский отдел
17 августа 1994 года.