

ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ

Дубна

P14-99-264

А.Ю.Дидык, А.Л.Суворов*, В.К.Семина,
А.Э.Степанов*, Ю.Н.Чиблуков*, А.Халил

ИЗМЕНЕНИЕ СТРУКТУРЫ ПОВЕРХНОСТИ Ni, W
И ХРОМОНИКЕЛЕВОЙ СТАЛИ X18H10,
ОБЛУЧЕННЫХ ВЫСОКИМИ ФЛЮЕНСАМИ ИОНОВ
КРИПТОНА ВЫСОКИХ ЭНЕРГИЙ

Направлено в журнал «Известия РАН, серия "Металлы"»

*ГНЦ РФ «Институт экспериментальной и теоретической физики»,
Москва

1999

Изменение структуры поверхности Ni, W и хромоникелевой стали X18H10, облученных высокими флюенсами ионов криптона высоких энергий

С использованием сканирующей электронной микроскопии изучена поверхность монокристаллического W, поликристаллического Ni и хромоникелевой стали X18H10, облученных ионами Kr с энергиями 305 и 245 МэВ до флюенсов $2 \cdot 10^{15}$ и $3 \cdot 10^{15}$ ион/см². По изменению структуры рельефа оценены коэффициенты испарения (распыления) поверхности этих материалов, которые оказались значительно большими, чем предсказывается моделью неупругого распыления. Предложен и реализован метод «ступеньки» для более точного измерения коэффициента испарения на примере Ni. Развита феноменологическая модель, объясняющая наблюдаемые на поверхности явления.

Работа выполнена в Лаборатории ядерных реакций им.Г.Н.Флерова ОИЯИ.

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна, 1999

Changes of Surface Structure of Ni, W and Chromium-Nickel Steel Cr18Ni10 Irradiated by High Fluences of Krypton Ions with High Energies

The surfaces of W single crystal, Ni polycrystal and chromium-nickel steel, irradiated by Kr ions with energy 305 and 245 MeV up to the fluences $2 \cdot 10^{15}$ and $3 \cdot 10^{15}$ ion/cm², were studied by means of scanning electron microscope. The evaporation coefficients of material surfaces were estimated on the base of changes of surface relief. The values of these coefficients turned out much more than ones predicted by the inelastic sputtering model. The method of «step» was offered and realized for the more correct estimations evaporation coefficient on the Ni example. The phenomenological model explaining the observed phenomena is introduced.

The investigation has been performed at the Flerov Laboratory of Nuclear Reactions, JINR.

1. ВВЕДЕНИЕ

Изучение особенностей воздействия ядерно-физических излучений на конденсированные среды вызывают пристальное внимание исследователей по целому ряду обстоятельств. Во-первых, такие работы важны с точки зрения понимания фундаментальных закономерностей взаимодействия заряженных частиц с твердыми телами с различной электронной структурой, а во-вторых, они имеют важное прикладное значение для создания ядерных установок, а также ускорителей тяжелых заряженных частиц [1-3].

Важное значение имеют явления, связанные с изменением структуры поверхности при воздействии тяжелых заряженных частиц различных энергий на материалы первой стенки термоядерных реакторов [4-6].

Значительный интерес вызывают вопросы о влиянии ионизационных потерь энергии тяжелых ионов высоких энергий на эволюцию и формирование дефектной структуры и на образование треков в полупроводниках, металлах и сплавах.

При прохождении иона высокой энергии основная доля его энергии (более 95%) идет на ионизационные потери - $(dE/dx)_{inel}$, и только в конце проективного пробега - в брегговском пике начинают преобладать упругие потери энергии $(dE/dx)_el$. Авторы ряда работ [1, 2] придерживаются мнения, что электроны в металлах успевают передать энергию электронов из трека окружающим электронам решетки, и тем самым локальные перегревы решетки в треке иона невозможны, так как прямой передачи энергии от электронов ионным остовам в той же области не происходит. По мере изучения эффектов трекообразования в металлах и сплавах было показано [3, 7-10], что после прохождения иона образуется сильно деструктурированная область с радиусами $r_1 \sim 10-40$ А, которая окружена дефектной областью с более низкой плотностью дефектов и с радиусами до $r_2 \sim 150$ А. Эти значения радиусов r_1 и r_2 зависят от типа материала и бомбардирующего иона. На основании полученных в этих работах данных сделан вывод [3] о том, что в металлах трекообразование носит характер, присущий изоляторам.

Цель настоящей работы - изучение особенностей изменения рельефа поверхности образцов Ni, W и хромоникелевой стали при облучении ионами криптона высоких энергий.

2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ МЕТОДИКА ИССЛЕДОВАНИЙ

Образцы никеля, хромоникелевой стали X18H10 перед облучением после механической обработки электролитически полировались для достижения хорошего качества поверхности для последующих исследований. После этого образцы никеля и стали отжигались в вакууме 10^{-3} Па при температуре 700°C в течение одного часа. Образцы монокристаллического вольфрама имели исходно достаточно хорошую поверхность. Данные образцы были предоставлены Институтом физики

металлов (г.Екатеринбург). Размеры образцов выбирались достаточными (10×10 мм²) для их изучения на сканирующем электронном микроскопе JSM-840 (СЭМ) с пространственным разрешением 100 А.

Образцы приклеивались к медному держателю, охлаждаемому водой, с использованием теплопроводящего клея на серебряной основе. Облучение проводилось при комнатной температуре в вакууме (не хуже 10^{-6} торр).

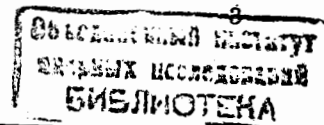
Для исследований структуры поверхности с использованием СЭМ образцы никеля, вольфрама и стали X18H10 облучались ионами ⁸⁶Kg (энергия ионов составляла 245 и 305 МэВ) до флюенсов $\Phi \cdot t = 10^{15}$ и $2 \cdot 10^{15}$ ион/см², где Φ - плотности потока ионов, а t - время облучения. При наборе больших флюенсов плотность потока ионов изменялась в пределах $\Phi = (1-2) \cdot 10^{11}$ ион/(см²·с). Точность измерения потока ионов и набранного флюенса составляла $\pm 5\%$. При флюенсах, превышающих 10^{14} ион/см², треки от отдельных ионов перекрываются и можно было изучать только интегральные эффекты.

3. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

На рис.1 приведены фотографии структуры поверхности Ni, необлученного и облученного ионами ⁸⁶Kg с энергией 305 МэВ до флюенса $\Phi \cdot t \approx 2 \cdot 10^{15}$ ион/см². Фотографии были получены методом СЭМ на сканирующем микроскопе JSM-840.

В случае образцов монокристаллического вольфрама произошло как распыление всех выступающих неоднородностей на поверхности, вследствие чего после облучения можно видеть гладкую поверхность с высокой степенью однородности. Для образцов никеля также произошло сглаживание рельефа поверхности, что особенно хорошо видно из сравнения изменений высоты выступающих зерен (рис.1а и б) с одновременным значительным более сильным испарением материала на границах зерен. Для хромоникелевой стали с толщиной образцов 13.6 мкм наблюдался аналогичный эффект с одновременным образованием на поверхности полусферических выступов. Практически аналогичная картина была получена при облучении хромоникелевой стали X18H10T ионами Хе (см. работу [11]). В данной работе было показано, что при росте флюенсов облучения происходит преобразование таких выступов в монокристаллы. Из фотографий структуры поверхности для облученных и необлученных материалов можно оценить коэффициенты испарения атомов мишеней Ni, W и хромоникелевой стали X18H10, значения которых представлены в таблице 1.

В месте нахождения границы между зернами коэффициент испарения для никеля достигает ~ 2000 атом/ион, что примерно в 4 раза выше значений коэффициента испарения материала с поверхности зерна (см.рис.1). Исходя из оценочных значений коэффициента испарения можно вычислить характерные размеры области, в которой атомы мишени были вынуждены покинуть свои места в решетке, для этих оценок можно



использовать достаточно простое приближение. Будем считать, что атомы испаряются из конуса с размерами: диаметр области - $D_{исп}$, а глубина - $H_{исп}$. Для расчетов используем простое приближение $D_{исп} \cong H_{исп}$, т.е. считаем, что испарение происходит из конуса с указанными выше размерами, как в [11,12]. Тогда объем испаренного материала связан с диаметром области испарения соотношением

$$V = \pi * D_{исп}^2 * H_{исп} / 12 \quad (1)$$

В выражении (1) объем испаренного материала оценивался из рис.1, 2 и затем пересчитывался в диаметр области испарения $D_{исп}$ и ее глубину $H_{исп}$. Диаметры $D_{исп}$ и глубины $H_{исп}$ кратеров на поверхности в месте прохождения иона представлены в таблице 1.

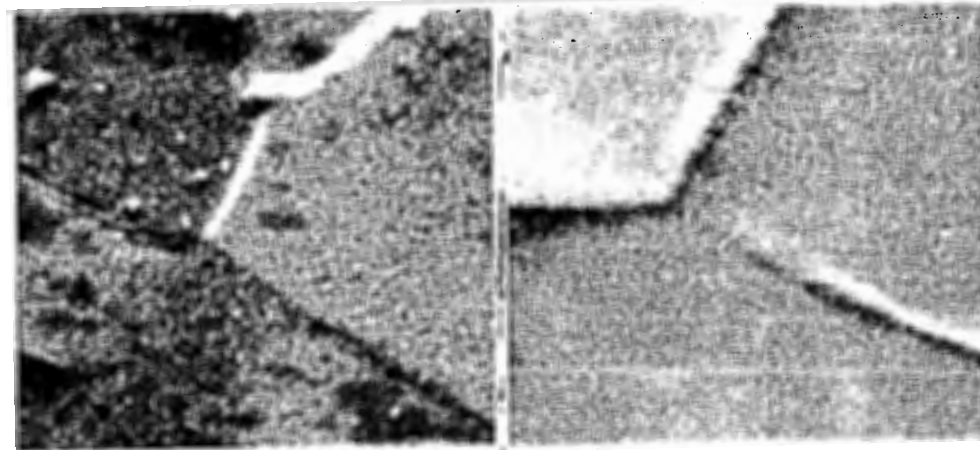
Нижняя граница значения коэффициента испарения, полученная в работах [11, 12] после облучения при повышенных температурах хромоникелевой стали X18H10T ($T_{обл} = 400-650^\circ\text{C}$), согласуется с коэффициентом испарения $K > 80$ атом/ион при облучении стали X18H10 при комнатной температуре (данная работа). Этот факт подтверждает изложенные в [11] представления об испарительном механизме образования кратеров на поверхности, так как коэффициент испарения не зависит от температуры облучения ($T_{tr} \gg T_{обл}$).

Отметим, что для хромоникелевой стали оценить коэффициент испарения (распыления) достаточно трудно, так как на фотографиях не видно достаточно характерных изменений рельефа для определения K . Поэтому приведенное значение K значительно меньше, чем истинное. Это же касается и коэффициентов испарения для никеля и вольфрама, которые носят, в значительной мере, оценочный характер.

Для более точного определения коэффициента испарения образец никеля, облученный до флюенса $\Phi * t \approx 2 * 10^{15}$ ион/см², был затем перекрыт диафрагмой на половину облученной части, а затем дополнительно облучен ионами ⁸⁶Kr с энергией 245 МэВ до флюенса $\Phi * t = 10^{15}$ ион/см². По высоте ступеньки между однократно и двукратно облученными частями (см. рис.2), которая составила $h \cong 0.35$ мкм, легко вычислить коэффициент испарения K_{Ni}^{Ni} , который оказался равным $K_{Ni}^{Ni} \sim 3000$ атом/ион. Это значение превышает значение коэффициента испарения, полученное при однократном облучении, довольно значительно. Для двукратного облучения Ni также можно оценить диаметр кратера на поверхности зерна, из которого происходит испарение атомов никеля - $D_{Ni}^{Ni} \sim 34 \text{ \AA}$.

Обсудим далее возможные механизмы такого поведения. В работе [1] делается утверждение, что температура в треке тяжелого иона в металлах не может превышать нескольких десятков градусов. В более поздней работе [18] показано, что для идеального кристалла температура в треке может достигать нескольких тысяч градусов.

В работе [13] высказаны основные положения о термическом пике, приводящем к созданию треков в диэлектрических материалах. В работах



а

б

Рис.1. Фотографии структуры поверхности поликристаллического Ni до (а) и после облучения (б) ионами ⁸⁶Kr с энергией 305 МэВ до флюенса $\Phi * t \approx 2 * 10^{15}$ ион/см² (x35000).

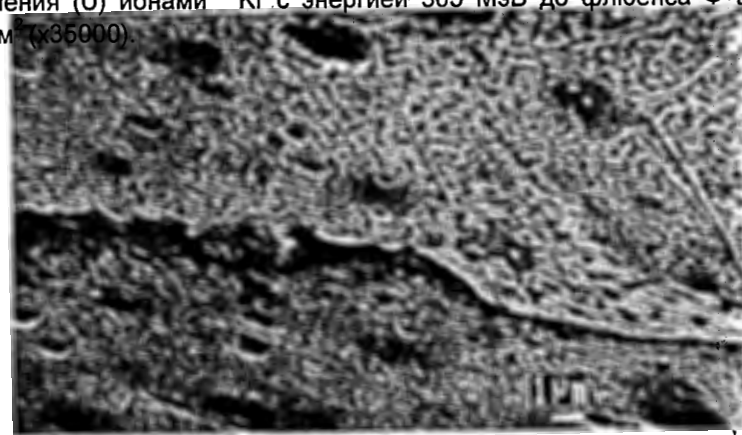


Рис.2. Фотография структуры поверхности поликристаллического Ni, облученного до флюенса $\Phi * t \approx 2 * 10^{15} + 1 * 10^{15}$ ион/см² ионами ⁸⁶Kr с энергиями 305 МэВ и 245 МэВ соответственно (нижняя часть фотографии) и до флюенса $\Phi * t \approx 2 * 10^{15}$ ион/см² (верхняя часть фотографии). Видна ступенька, разделяющая эти две области (x5000).

[11, 12] использованы основные положения работы [13] для объяснения образования треков в алмазе и хромоникелевой стали X18H10T.

Современные представления о воздействии тяжелых ионов на металлы и сплавы изложены в работах [14,15]. В этих работах для описания дефектообразования в металлах рассматривалась модифицированная модель "кулоновского взрыва", согласно которой имеется прямая передача энергии от налетающего иона нескольким атомам мишени когерентно в пространстве и времени [3]. Модель термического пика использовалась в [16] для объяснения процессов трекообразования и оценки радиуса трека в аморфных сплавах с металлической проводимостью.

Как было показано в работах [3,11,16,17], в металлах вполне можно применять модель термического пика. Для металлов существует ситуация, когда высокая плотность d-электронов благоприятствует электрон-фононным взаимодействиям [3, 17]. В таблице 1 представлены основные величины, характеризующие тепловые процессы в изучаемых материалах, такие, как T_{tr} , $T_{пл}$, $T_{кип}$, $L_{исп}$, которые будут использованы в дальнейших оценках. Для вычисления температуры в треке используем представления работ [17, 11], в соответствии с которыми температура в треке определяется из выражения

$$T_{tr}(x) = S_{inel}(x) / (\pi \cdot R_{tr}^2 \cdot C_i \cdot \rho_i), \quad (2)$$

где C_i - удельная теплоемкость мишени; ρ_i и R_{tr} - плотность и радиус трека иона соответственно, а x - глубина в мишени в направлении проективного пробега тяжелого иона R_p . Радиус трека пропорционален удельным ионизационным потерям энергии S_{inel} [17]:

$$R_{tr}(x) \sim (S_{inel}(x))^{1/6}. \quad (3)$$

Далее, для оценок, будем рассматривать температуру трека вблизи поверхности $T_{tr}(x=0)$, поскольку именно она определяет температурные эффекты при испарении.

В работе [17] были сделаны оценки радиуса, температуры и характерного времени расплывания трека для железа, облученного осколками деления с массой 100 аем и энергией 100 МэВ, которые оказались следующими: $R_{tr} = 50$ А, $T_{tr} = 6000$ К, $\tau_{tr} = 10^{-12}$ с. Заметим, что в этом случае удельные ионизационные потери энергии осколков деления ядер урана составляют $S_{inel} \approx 25$ МэВ/мкм.

В таблице 1 приведены температуры и характерные радиусы треков тяжелых ионов ^{86}Kr с энергией 245 МэВ в изученных материалах.

Отметим, что выполненные оценки температур T_{tr} носят приближенный характер, так как в выражении (2) не учитывается доля неупругих потерь энергии иона, которая передается от нагретых электронов в треке электронам окружения, что приводит к диссипации энергии из области трека.

В работе [18] показано, что время передачи энергии от возбужденных после прохождения тяжелого иона электронов атомам решетки кристалла составляет 10^{-12} с, и атомы решетки не успевают нагреться до существенных температур. В случае кристалла с достаточно высоким количеством введенных радиационных дефектов это время уменьшается до 10^{-13} с, что приводит к значительному нагреву атомов, расплавлению и образованию треков [18]. Конечную температуру на оси трека можно оценить по формуле [18]

$$T_{tr}' = [(2 \cdot h \cdot S^2 \cdot N \cdot \sigma_0 \cdot \alpha \cdot r_0^2 \cdot T_0^{1/2} \cdot \{(T_0/\epsilon_F)^{1/2} - 1\}) / (9 \cdot a \cdot \beta)]^{1/2}, \quad (4)$$

где S - скорость звука; N - плотность атомов мишени; $\sigma_0 = 2 \cdot \pi \cdot a_0^2$; a_0 - борковский радиус; r_0 - начальный радиус области возбужденных электронов; T_0 - первоначальная температура электронов в возбужденной области; a - постоянная решетки; $\alpha \sim 0.05$ эВ $^{-1}$ и $\beta \sim 0.1$ эВ $^{-1}$ - постоянные, слабо зависящие от вида атомов мишени для $Z \geq 20$. Расчет, выполненный по этой формуле, дает величину температуры в треке $T_{tr}' \approx 3700$ К. Сравнивая температуры в треке для Ni, полученные по формулам (2) и (4), с учетом замечания к таблице 1, можно сделать вывод, что обе оценки дают температуры в треке, превышающие температуру плавления.

Таблица 1. Значения проективных пробегов (R_p) в никеле, хромоникелевой стали и вольфраме ионов ^{86}Kr (305 МэВ), величины ионизационных потерь энергии ($S_e = (dE/dx)_{inel}$), коэффициенты испарения (K), диаметры ($D_{исп}$) и глубина кратеров ($H_{исп}$), оценочный радиус треков (R_{tr}) [18], температура в треке (T_{tr}), а также $T_{пл}$, $T_{кип}$ и $L_{исп}$. Расчет R_p и S_e выполнен по программе SRIM.

Материал	Ni	X18H10	W
R_p , мкм	14.2	15.4	11.9
S_e , МэВ/мкм	28	24.5	35
K , атом/ион	~ 500	> 80	~ 1260
Диаметр кратера, $D_{исп}/H_{исп}$	27.6 и 44 А ^{*)}	15.6 А	42.4 А
R_{tr} , А	~ 50 А	~ 50 А	~ 50 А
Температура в треке, T_{tr}	$1.04 \cdot 10^4$ К	$0.95 \cdot 10^4$ К	$2.2 \cdot 10^4$ К
Температура плавления, $T_{пл}$	1728 К	1673 К	3693 К
Температура кипения, $T_{кип}$	3073 К	~3145 К ^{**)}	5953 К
Теплота сублимации, $L_{исп}$	6.38 кДж/г	6.27 кДж/г ^{**)}	4.18 кДж/г

^{*)} Относится к распылению границ зерен;

^{**)} означает, что параметры для хромоникелевой стали взяты такими же, как и для железа, поскольку концентрация этого элемента в стали X18H10 составляет 72 %.

Как видно, температуры на поверхности изученных материалов в 3-4 раза превосходят их температуры кипения $T_{кип}$ и тем более температуры плавления $T_{пл}$ (см. табл.1). Поэтому процессы испарения могут происходить за времена, меньшие, чем время существования трека τ_{tr} . То есть за времена, при которых температура в треке на поверхности станет ниже температуры испарения. В работе [11] был также введен критерий, когда испарение наиболее интенсивно, когда плотность мощности $P_{ион}$, вносимой ионом при его прохождении через облучаемую поверхность, превышает плотность критической мощности испарения $P_{кр}$. Выражения для этих величин имеют вид [11]:

$$\begin{aligned} P_{ион} &= 4 \cdot \Delta E / (\pi \cdot D_{исп}^2 \cdot t_{пр}), \\ P_{кр} &= 4 \cdot K_i \cdot L_{исп} \cdot N_{исп} \cdot \rho_i / D_{исп}^2. \end{aligned} \quad (5)$$

Здесь ΔE - энергия, теряемая тяжелым ионом от поверхности до глубины $N_{исп}$ за время его пролета этой глубины $t_{пр} = N_{исп} / (2 \cdot E/M)^{1/2}$. E и M - энергия и масса тяжелого иона. Как легко показать для изученных материалов, с характеризующими их коэффициентами $L_{исп}$ и значениями $D_{исп}$ и $N_{исп}$ (см. таблицу 1), выполняется условие

$$P_{ион} \gg P_{кр}. \quad (6)$$

Следовательно, процессы испарения должны идти весьма эффективно.

4. ВЫВОДЫ

Модель неупругого распыления металлов и сплавов [1, 19] не описывает столь значительных коэффициентов испарения изученных материалов, что, по-видимому, связано с тем, что основные ее положения основаны на рассмотрении идеальных кристаллов. При значительных флюенсах облучения кристалл перестает быть идеальным, и роль дефектов становится преобладающей.

Эффект увеличения коэффициентов испарения по мере возрастания флюенса (на примере образцов Ni) позволяет сделать вывод о том, что в данном случае имеет место испарение материала за счет накопления дефектов и их комплексов, которые являются ловушками для электронов и снижают длину свободного пробега "горячих" электронов с одновременным уменьшением электронной температуропроводности и тем самым приводят к возрастанию температуры в треке тяжелых ионов.

Использование метода двойного облучения, заключающегося в первоначальном получении достаточно гладкой поверхности при первичном облучении на всем образце, а затем облучение части однократно облученной поверхности (с перекрытием другой однократно облученной части диафрагмой) необходимым флюенсом позволяет при изучении эффектов испарения материала измерять с необходимой точностью

коэффициенты распыления. При этом возможно даже использовать такие методы, как СТМ.

Представляется важным продолжить данные эксперименты для получения более детальных представлений о механизме взаимодействия тяжелых ионов высоких энергий с металлами и сплавами.

Авторы данной работы выражают искреннюю признательность Ю.Н.Явлинскому за ценные и полезные замечания, высказанные при обсуждении основных концепций данной работы.

Работа выполнена при поддержке проекта МНТЦ N 467 и при частичной поддержке РФФИ (N99-02-18145).

ЛИТЕРАТУРА

1. Баранов И.А., Мартыненко Ю.В., Цепелевич С.О., Явлинский Ю.Н. Неупругое распыление твердых тел ионами//УФН, 1988, т.156, с.477.
2. Альтовский И.В. Радиационные нарушения// Итоги науки и техники. Металловедение и термическая обработка. М.: ВИНТИ, 1987, т.21, с.3-52.
3. Комаров Ф.Ф. Эффекты высокоэнергетической имплантации в металлы. Изв.высших учебных заведений. Физика, 1994, N.5, с.23-40.
4. Bondarenko G.G. Irradiation Effects in Surface Layers of Aluminium Alloys and Austenitic Steels // Mater.Sci.Forum., V.97-99, 1992, p.695-718.
5. Гусева М.И., Мартыненко Ю.В., Плешивцев Н.В. Проблемы первой стенки термоядерных реакторов // Исследование и разработка материалов для реакторов термоядерного синтеза. М.: Наука, 1981, с.106-115.
6. Беграмбеков Л.Б. Эрозия и трансформация поверхности при ионной бомбардировке // Итоги науки и техники. Сер.: Пучки заряженных частиц и твердое тело. М.: ВИНТИ, 1993, Т.7, с. 4-53.
7. Riviere J.P., Dinhut J.F., Paumier E., Dural J.// Nucl.Instr.and Meth., 1993, V.B80/81, p.65-69.
8. Dunlop A. and Lesueur D. Irradiation of Metallic Targets with High-Energy Heavy Ions: High Electronic Excitation Induced Effects // Mater.Sci.Forum, 1992, V.97-99, p.553-559.
9. Legrand P., Dunlop A., Lesueur D. et.al. Phase Transformation in Metallic Targets Submitted to Very High Electronic Excitation // Mater.Sci.Forum., V.97-98, 1992, p.587-593.
10. Dunlop A., Lesueur D., Jaskierowicz G., Schildknecht J.// Nucl.Instr.and Meth., 1989, V.B36, p.412-419.
11. Дидык А.Ю. Радиационное воздействие тяжелых ионов на хромоникелевую сталь при высоких температурах.// Изв.РАН, сер. Металлы, N 3,1995, с. 128-135.
12. Adawi M.A. and Didyk A.Yu. Formation of Needle Structures on the Surface of Metals Irradiated with Heavy Ions at High Temperatures.// J. Advanced Materials, No. 2(2), 1995, p.126-132.

13. Fleicher R.L., Price P.B. and Walker R.M. Ion Explosion Spike Mechanism for Formation of Charge-Particles Tracks in Solids // Nuclear Tracks in Solids. Berkely: University Press, 1975.
 14. Lagrand P., Morillo J., Pontikis V. // Radiat.Eff. and Defects in Solids , 1993, V.126, p.151-154.
 15. Lesueur D., Dunlop A. // Radiat.Eff.and Defects in Solids, 1993, V.126, p. 163-172.
 16. Toulemonde M., Paumier E., Dufour C. // Radiat.Eff. and Defects in Solids, 1993, V.126, p. 201-206.
 17. Давыдов А.А., Калиниченко А.И. Механические эффекты вблизи треков и термических пиков // Вопросы атомной энергии и техники. Сер. Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение. 1985, Вып.3(36), с. 27-30.
 18. Yavlinskii Yu.N.// Nucl. Instr. and Meth., 1998, V.146, pp.142-146.
-

Рукопись поступила в издательский отдел
8 октября 1999 года.