

5734/2-81

ОбЪЄДИНЕННЫЙ Институт Ядерных Исследований Дубна

23/4-81

P7-81-610

В.Н.Бугров, С.А.Карамян

ИССЛЕДОВАНИЕ ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ ТЯЖЕЛЫХ ИОНОВ С МОНОКРИСТАЛЛАМИ

Направлено на Советско-японский симпозиум по взаимодействию быстрых заряженных частиц с кристаллами /Новосибирск, 28 сентября -2 октября 1981 г./



1. ВВЕДЕНИЕ

Наблюдение эффекта теней в ядерных реакциях под действием тяжелых ионов при использовании монокристаллических мишеней позволяет получить данные о времени протекания ядерных реакций, что является фундаментальной проблемой современной физики. Исследование взаимодействия тяжелых ионов с монокристаллами представляет значительный интерес также с точки зрения получения данных об особенностях каналирования тяжелых многозарядных частиц и о радиационном повреждении кристаллической структуры. В настоящей работе представлены результаты, полученные в последние годы в Лаборатории ядерных реакций ОИЯИ, по измерению времени протекания реакций деления ядер и по исследованию радиационного повреждения кристаллической структуры при взаимодействии тяжелых ионов с энергией 0,6-8,0 МэВ/нукл. с монокристаллами.

Впервые метод теней на пучке тяжелых ионов был применен в/1,2/что позволило получить экспериментальные данные о времени протекания реакции деления ядер.Одним из важных методических вопросов в таких экспериментах является вопрос о степени радиационного повреждения монокристалла пучком тяжелых ионов и о влиянии повреждения на результат.С другой стороны, исследование радиационного повреждения монокристаллов тяжелыми ионами само по себе имеет важное физическое и практическое значение. Причины этого: а/ наиболее высокое повреждающее действие тяжелых ионов; б/ отсутствие в литературе количественных результатов для области энергий тяжелых ионов ~1,0-10 MэB/нукл.; в/ потребности современного материаловедения, имеющего тенденцию широкого применения ионного легирования и радиационной обработки для получения материалов с новыми свойствами.

2. РАДИАЦИОННОЕ ПОВРЕЖДЕНИЕ МОНОКРИСТАЛЛОВ ТЯЖЕЛЬМИ ИОНАМИ

Эксперимент состоит в облучении толстой монокристаллической мишени коллимированным пучком тяжелых ионов /диаметр пучка 1 мм/ и в регистрации теневой картины в угловом распределении продуктов ядерной реакции с помощью твердотельных трековых детекторов, размещенных на расстоянии 120 мм от мишени. Исследованы ядерные реакции деления при облучении монокристалла UOg ионами ¹²С /81 МэВ/ и монокристалла W ионами ²²Ne /174 МэВ/,

ł



<u>Рис.1.</u> Зависимость глубины теневого минимума от плотности дозы облучения: а/ реакция деления ядер W + ²²Ne /174 МэВ/, кристаллографическая ось <111> – под углом 161° к пучку; б/ упругое рассеяние W + ⁴⁰Ar /24 МэВ/, <111>, 161°; в/ упругое рассеяние GaP + ⁸¹P /31 МэВ/, <110>, 95°.

а также реакции упругого рассеяния W + 40 Ar /24 M3B/, GaP₊ 31p /31 M3B/. Пучки заряженных частиц получены на циклотронах Лаборатории ядерных реакций ОИЯИ. Для регистрации осколков деления и рассеянных ионов 40 At применялись стеклянные детекторы, а для регистрации ионов 31 P - пластиковые трековые детекторы. Зафиксированная теневая картина про-

сматривалась для получения количественной характеристики теневого минимума - его глубины χ - для одной из основных кристаллографических осей монокристалла. Повреждение монокристалла приводило к заметному ухудшению качества теневой картины и к росту величины χ с увеличением интегральной плотности дозы облучения. Во всех случаях пучок направлялся на монокристалл в случайном направлении, ке совпадающем с кристаллографическим выделенным направлением. Характерной особенностью эксперимента является наблюдение радиационного повреждения монокристалла, так сказать, "в момент возникновения", а не post factum.

Результаты измерения величины χ в зависимости от плотности дозы I приведены на <u>рис.1</u>. Видно, что зависимость χ (I) может быть в некотором приближении аппроксимирована прямой линией χ (D= χ_0 + RI . Таким образом, повреждающее воздействие иона на определенный монокристалл характеризуется параметром R.Beличины R, полученные в изученных случаях, приведены в таблице. Заметим, что измеренные величины X характеризуют качество приповерхностного слоя монокристалла толщиной несколько мг/см² по нормали к поверхности. Толщина работающего слоя мишени меняется для различных ионов и монокристаллав, она приведена в таблице. Для взаимодействий UO₂ + ¹²C /81 МзВ/ и W+²²Ne /174 МзВ/, в которых регистрировались осколки деления и условмя наблюдения были сходными, отношение величин R близко к отношению атомных тормозных лотерь ионов ¹²C и ²²Ne, считавшихся

Таблица

Мищень	UOg	W	W	GaP
Ион	¹² C	²² Ne	⁴⁰ Ar	⁸¹ P
Энергия, МэВ	81	174	24	31
Толщина слоя, мг см ⁻²	5,8	3,3	1,4	0,84
R /+25%/, 10-18 _{CM} 2	3,0	10,1	84	135
$R/Z_1^2 Z_2^2 E^{-1}_{Y}$, $10^{-20} cm^2 M \Rightarrow B$	1,58	2,70	0,52	4,33

Результаты измерения степени радиационного повреждения монокристаллов

пропорциональными произведению $Z_1^2 Z_2^2 E^{-1} \gamma$, где Z_1 и E - атомный номер и энергия иона; $\gamma = \frac{A_1}{A_2}$ - отношение массовых чисел иона и мишени. В <u>таблице</u> приведено отношение R к фактору, характеризующему атомные тормозные потери иона. При переходе от случая W + ²² Ne /174 MэB/ к W + ⁴⁰Ar /24 MэB/ атомные тормозные потери увеличиваются в = 40 раз, а величина R возрастает только в = 10 раз. Для объяснения неполной корреляции в данном случае нужно учитывать неполное подобие деканалирования осколков деления и упруго рассеянных ионов, в том числе и различие, возникающее из-за зависимости начальной энергии рассеянного иона от толщины слоя монокристалла, в отличие от осколков деления, кинетическая энергия которых практически не зависит от толщины слоя, пройденного бомбардирующим ионом.

Полученные функции $\chi(l)$ могут быть использованы для вычисления концентрации дефектов в зависимости от плотности дозы облучения монокристаллов. При этом должна быть использована программа, учитывающая деканалирование интегрально для слоя конечной толщины и пригодная для случая тяжелых частиц, таких, как ⁸¹P, ⁴⁰Ar и осколки деления, в некоторых предположениях о распределении дефектов по глубине.

Рассмотрим теперь влияние радиационного повреждения на измерение ядерных времен жизни методом теней. Обычно в таких измерениях определяются глубины минимумов χ_1 и χ_2 для двух идентичных кристаллографических осей, составляющих разные углы с направлением пучка. Измеряемая величина $\Delta\chi_1 = \chi_1 - \chi_2$ чувствительна/3/ к времени протекания реакции. Важным методическим



<u>Рис.2</u>. Измеренные значения Δ_{χ} для разной плотности дозы облучения: a/ реакции деления ядер: o $- UO_2 + {}^{12}C$ /81 МэВ/, кристаллографические осн <110 > под углами 90° и 150° к пучку; • - W + 22 Ne /174 МзВ/, (111>, 90°; 161°; 6/ упругое рассеяние W + 40 Ar /24 МэВ/, <111>, 90°; 161°.

вопросом является выяснение устойчивости величины Ау по отношению к радиационному повреждению монокристалла. Поэтому были сделаны измерения зависимости $\Lambda_X(I)$ для облучений $UO_{a+}^{12}C$ /81 МэВ/ и ₩ + ²² Ne /174 МэВ/. Результаты приведены на рис.2а. из которого видно, что в пределах погрешности измерения не обнаруживается какого-либо изменения Δ_X с I. Для дальнейшего контроля методики измерений были проведены модельные эксперименты, в которых сохранялась геометрия измерений времени протекания реакций, однако регистрировались не продукты деления ядер, а упруго рассеянные ионы в реакции $W + \frac{40}{24}$ Ar /24 MaB/. Временная задержка упругого рассеяния равна нулю. Ставилась задача проверить, не возникает ли отличное от нуля значение ΔX по мере облучения монокристалла за счет методических причин. а не в результате временной задержки реакции? Результаты модельного эксперимента приведены на рис. 26, из которого видно, что для упругого рассеяния величина Δ_{χ} остается равной нулю вплоть до максимальной плотности дозы ионов, Отметим, что в модельном эксперименте сохраняются почти все особенности эксперимента по измерению времени протекания реакции деления, в том числе и различие энергии частиц для двух углов ориентации кристалло рафических осей относительно пучка. Таким образом, данные рис.2а.б представляют собой веские доказательства того. что в используемой схеме измерений отличное от нуля значение Δx связано с временной задержкой ядерной реакции, а не с какимилибо методическими особенностями эксперимента.

3. ВРЕМЯ ПРОТЕКАНИЯ РЕАКЦИИ ДЕЛЕНИЯ ЯДЕР

При взаимодействии тяжелых ионов с ядрами происходят различные ядерные реакции, поэтому не всегда можно однозначно определить, в каком ядерном процессе образовались наблюдаемые осколки деления. Так, при облучении мишеней с Z = 60-80 ионами

4

типа ¹²C, ¹⁶O, ²²Ne осколки деления образуются, главным образом. При распаде составного ядра - продукта слияния взаимодействующих ядер, а в случае тяжелых мишеней, типа тория, урана, заметный вклад в полное сечение деления может давать деление продуктов реакций передачи нуклонов и неполного слияния ядер мишени и бомбардирующего иона. Наличие нескольких компонент реакции деления приводит к неоднозначности извлечения временных характеристик процесса из измеренной величины Δx_{\star} по сути дела возникает задача определения нескольких параметров из одной измеренной величины. Количественное измерение степени радиационного повреждения монокристаллов позволяет определить еще одну величину, связанную с временем протекания χ_{a}^{r} - временной вклад в глубину теневого минимума, реакции. и, таким образом, доопределить задачу нахождения временных параметров реакции. Конкретнее можно сказать, что величина чувствительна, главным образом, к долгоживущим временным компонентам деления с $r \geq rac{1.0 \mathrm{\AA}}{\mathrm{V}}$, а величина Λ_X – к временным компонентам, характеризующимся параметром 7 _ 0.05 - 0.50 Å ---, где v - скорость отдачи составного ядра.

В описываемых здесь экспериментах кроме измерения величин Λ_X производилось определение χ_2^7 для реакций ²³⁸U + ¹² C /81 МэВ/ и W + ²² Ne /174 МэВ/. В первой реакции обнаружено значение $\chi_p'=0,05+0,01$, а во второй - не найдено вклада долгоживущей ветви деления при уровне чувствительности несколько процентов от полного сечения деления. Вклад долгоживущей ветви деления ≥ 5% от полного сечения деления в реакции ²³⁸U + ¹²C /81 МэВ/ связан, очевидно, с вкладом деления продуктов прямых взаимодействий иона и мишени. Эти продукты имеют широкий спектр энергий возбуждения в области меньше энергии возбуждения составного ядра, и поэтому они могут быть относительно долгоживущими, т :: 10⁻¹⁶с. При этом вероятность их деления составляет заметную величину, что и объясняет экспериментальный результат. Наблюдение долгоживущей ветви деления, связанной с распадом продуктов прямых реакций, в случае 238 U + 12 C позволяет пред-положить, что и в реакциях 238 U + 18 O , 238 U + 22 Ne такая ветвь должна иметь место. Поэтому следует рассмотреть заново вопрос о вкладе этой ветви деления в измеренные значения $\Delta_{\mathbf{Y}}$ для указанных реакций /4/.

На основе известных в литературе сечений, угловых распределений и спектров продуктов прямых реакций вычислен вклад в величину Δ_X деления продуктов реакций передачи нуклонов, то есть процесса типа (HI, $_ZA$ f), а также деления продуктов неполного слияния с вылетом прямой «-частицы-(HI, $_{\alpha}xnf$). Величина Δ_X для распада составного ядра - (HI, xnf) взята на основе расчетов/ $^{5/}$. Результаты приведены на рис. 3. Видно, что разные



Рис.4. Сравнение результатов измерения величин $\Delta_X/a/u$ $\chi_2'/6/с$ расчетом: о – реакция деления ядер UO₂ + Не /23-35 МэВ/, кристаллографические оси <110> под углами 90° и 150° к пучку; •-UO₂+³He /25-47 МэВ/, <110>, 90°, 150°; сплошная линия – результат расчета /рисунок из работы /7//.

Рис.3. Вычисленный вклад различных процессов в величину разности глубин теневых минимумов для реакций ²³⁸U + HI': □ - деление составного ядра (HI, xnf); 20 - деление продуктов неполного слияния ядер с вылетом прямой а~частицы (HI, axnf); 20 - деление продуктов реакций передачи нуклонов (HI, Af).



ветви реакции деления дают сравнимый вклад в значение Δ_X , а суммарное рассчитанное значение Δ_X близко к экспериментальным результатам^{/4/} для случая ²³⁸U+ HI.

Для реакций W + HI ожидается малый вклад деления продуктов прямых реакций в полное сечение деления, что и подтверждается ненаблюдением долгоживущей временной компоненты деления при измерении величины χ_{2}^{r} . Следовательно, обнаруженные $^{/1,2/}$ для этой группы реакций значения Δ_{χ} нужно приписать, главным образом, времени протекания процесса распада составного ядра.

После того как определены величины Δ_X и χ_2^p , соответствующие процессу распада составного ядра, возникает задача разложения этих величин на части, отвечающие вкладу деления после испускания различного числа нейтронов, то есть различным ветвям процесса типа (HI,xmf). Для решения этой задачи наиболее правильным подходом является метод обратной задачи или математическое моделирование процесса с привлечением дополнительных литературных данных.

6

Авторы работы /6/ берут за основу гипотезу о том, что главный вклад в χ_{g}^{\dagger} и $\Delta \chi$ вносит деление относительно слабовозбужденного испарительного остатка, то есть ветви деления (HI,xnf) при x = 3÷5, а ветви с x ≈ 0÷2 дают пренебрежимо малый вклад из-за резкого убывания времени жизни ядра с ростом энергии возбуждения. Для проверки этой гипотезы нами были изучены/7/ реакции 238 U + 4 He и 238 U + 3 He при энергии ионов, перекрывающей диапазон энергии возбуждения исходных составных ядер от 18 до 56 МэВ. Выбранные реакции характеризуются значительным вкладом многих ветвей распада составного ядра с х от 0 до 5-6 /при максимальных энергиях возбуждения/ в полное сечение деления. Поэтому деление относительно слабовозбужденного испари~ тельного остатка заведомо дает некоторый вклад в измеряемые величины Δ_X и $\chi_2^{\, r}$. Был выполнен модельный расчет, учитывающий вклад ветвей с х от 0 до $x_{MAKC,B} \Delta_X и \chi_2^7$ в предположении убывающих по модели ферми-газа функций времени жизни ядер в зависимости от энергии возбуждения г (Е*). На рис. 4 приведено сравнение экспериментальных результатов с расчетом. Видно, что в области энергий возбуждения исходного составного ядра Е* > >34 МэВ имеет место значительное расхождение между результатами эксперимента и расчетом для величин Δ_X . Это расхождение показывает, что при значительных энергиях возбуждения, Е* ≥30 МэВ, функции времени жизни г (Е*) не убывают к малым значениям, <10⁻¹⁹с, а выходят на уровень значений около 10⁻¹⁷- 10⁻¹⁸с. При этом значительный вклад в измеренные значения Δ_{Y} дают ветви деления после испускания малого числа нейтронов x = 0+3, что и объясняет наблюдаемое расхождение. Для области Е*<30 МэВ расчетные и экспериментальные данные удовлетворительно согласуются. Это подтверждает адекватность расчета при тех энергиях, при которых на основе экспериментальных данных, приведенных в литературе /библиографию по этому вопросу см. в'7/, взяты правдоподобные значения функций г(Е*) и функций вероятности деления ядер в зависимости от энергии возбуждения.

Таким образом, в экспериментах по наблюдению эффекта теней при облучении монокристаллов UO₂, W и GaP тяжелыми ионами и ионами гелия получены следующие основные результаты:

1/ зафиксированы отличные от нуля значения характеристик теневых минимумов – Δ_X и χ_2^r , связанных с временной задержкой реакции деления ядер;

2/ получены количественные данные о радиационном повреждении монокристаллов тяжелыми ионами. Показано отсутствие систематической методической погрешности в измерении Δ_X и отсутствие корреляции величин Δ_X с радиационным повреждением моно-кристаллов;

3/ выявлен вклад процесса деления продуктов прямых реакций в измеренные значения Δ_X и χ_2^{σ} .В большинстве случаев основной вклад в Δ_X дает процесс распада составного ядра;

4/ обнаружено, что при энергиях возбуждения исходного составного ядра с энергией 30-50 МэВ значительный вклад в измеренные значения Δ_{χ} дают начальные ступени распада составного ядра, то есть ветви (HI,xnf) с x = 0 ⁴3.

ЛИТЕРАТУРА

- Карамян С.А., Нормуратов Ф., Оганесян Ю.Ц. В кн.: Труды Международной конференции по физике тяжелых ионов. ОИЯИ, Д7-5769, Дубна, 1971, с.391.
- 2. Каманин В.В. и др. ЯФ, 1972, 16, с.447.
- 3. Карамян С.А., Меликов Ю.В., Тулинов А.Ф. ЭЧАЯ, 1973, 4, с.456.
- 4. Бугров В.Н. и др. ЯФ, 1977, 25, с.713.
- 5. Каманин В.В., Карамян С.А. ЯФ, 1978, 28, с.403.
- Andersen J.U. et al. Phys. and Chemistry Fission, IAEA, Vienna, 1980, vol.1, p.387.
- 7. Бугров В.Н., Карамян С.А. ОИЯИ, Р15-80-762, Дубна, 1980.