

РАСПЫЛЕНИЕ МЕЛКОДИСПЕРСНЫХ СРЕД
ОСКОЛКАМИ ДЕЛЕНИЯ ЯДЕР

В. В. Катин

Рассмотрена задача распыления изолированных зерен и мелкодисперсных покрытий металла осколками деления ядер. Разрушение материала мишени происходит за счет энергии, выделившейся в электронной подсистеме. Распыление изолированных зерен существенно отличается от распыления мелкодисперсных покрытий. Коэффициент распыления сильно зависит от размера распыляемого зерна.

Распыление металлов осколками деления (ОД) в последнее время стало предметом серьезного исследования. Как показано в экспериментах [1, 2], разрушение материала мишени происходит за счет энергии, выделившейся в электронной подсистеме, что составляет более 90 % всей энергии осколка. По существу — это новое физическое явление, принципиально отличающееся от распыления, происходящего в результате упругих атомных столкновений. Аналогичные процессы, по-видимому, имеют место при нейтрализации многозарядных ионов (с зарядом $Z \geq 20$) на поверхности металлов, а также при взаимодействии с мишенями импульсных лазерных и электронных пучков.

Вопрос о распылении металлов ОД рассматривался ранее, и был предложен ряд моделей, обзор которых приводится в [1]. В данной работе рассмотрено распыление мелкодисперсных металлических покрытий в виде атомов в отличие от отрыва целых микрокристаллов [3], обсуждаются процессы распыления отдельных изолированных зерен, а также зерен, образующих покрытия образцов. Предлагаются два основных механизма распыления — полем двойного электрического слоя на поверхности образца [3] и испарением.

Расчеты проведены для золота и урана, что обусловлено хорошо развитым экспериментом для золотых мишеней и интересом к поведению урановых микрочастиц в системах с делящимся веществом.

1. Возбуждение электронной подсистемы зерна осколком деления

Типичный осколок деления тяжелых ядер имеет атомный номер 40—50, массу $M_0 \sim 100$ и энергию $E_0 \sim 100$ МэВ. Потери энергии такого осколка в золоте и уране составляют $(dE/dx) \approx 3.5$ кэВ/Å [4], причем практически вся энергия идет на возбуждение электронов. В работе [3] показано, что ОД образует в металле область возбужденных электронов с начальным радиусом $r_0 \approx 10$ Å и равновесным распределением электронов с начальной температурой $T_0 = 15 \div 25$ эВ. Средний заряд Z ионов в этой области превышает единицу. Его величину в зависимости от температуры можно определить по аппроксимационной формуле [3]

$$Z(T) = \begin{cases} Z_0(T/T_*), & T \geq T_* \\ Z_0, & T \leq T_* \end{cases} \quad (1)$$

(для золота $Z_0=1$, $T_*=6.8$ эВ; для урана $Z_0=2$, $T_*=10$ эВ).

Релаксация горячей области происходит за счет электронной теплопроводности, причем температуропроводность электронов $\chi > 3 \text{ см}^2/\text{с}$ [5]. Характерное время распространения электронного тепла на все зерно (радиусом $R \approx 30 \text{ \AA}$) не превышает $t_1 \leq R^2/2\chi \approx 10^{-14} \text{ с}$.

При размерах зерна, меньших длины пробега осколка ($\lambda \approx 10^{-4} \text{ см}$ [4]), выделяется энергия $(dE/dx)l$; l — средний пробег осколка в зерне шарообразной формы радиуса R : $l = \alpha R$, $\alpha \approx 0.6$.

В работе [3] показано, что при энерговкладе на один атом

$$Q = (dE/dx)l / (4\pi^{1/3}) R^3 n$$

(n — плотность атомов вещества) температура электронов T определяется выражением (ε_F — энергия Ферми)

$$T = \begin{cases} (2/5)^{2/3} \varepsilon_F [(5Q/3Z_0 \varepsilon_F + 1)^2 - 1]^{1/2}, & T \leq T_* \\ (2T_* Q / 3Z_0)^{1/2}, & T \geq T_* \end{cases} \quad (2)$$

Одним из основных вопросов в распылении ОД является вопрос о передаче энергии электронов атомам, поскольку осколок передает свою энергию в основном электронам, а для распыления необходимо, чтобы энергию приобрели атомы мишени. При температуре решетки $\Theta \ll T$ характерное время передачи энергии от электронов фононам составит [5] (Θd — температура Дебая)

$$t_2^{-1} = T^{-1} n v Z(T) 4\pi d^2 (ka)^2 (\Theta d) m v s \frac{0.4}{M s^2}. \quad (3)$$

Для распыления большое значение имеет зависимость энергии связи U атомов металла от температуры T электронов. В работе [3] показано, что зависимость $U(T)$ определяется выражением

$$U = U_0 + 3\varepsilon_F/5 - (3/2)[T^2 + (2\varepsilon_F/5)^2]^{1/2}, \\ U_0 = U(0), \quad U_{0 \text{ Au}} \approx 3.5 \text{ эВ}, \quad U_{0 \text{ U}} \approx 5.1 \text{ эВ}. \quad (4)$$

При $T = T_1$ ($T_{1 \text{ Au}} = 4 \text{ эВ}$, $T_{1 \text{ U}} = 5.7 \text{ эВ}$) величина U обращается в нуль, при $T \geq T_1$ связь атомов отсутствует.

В результате поляризации на поверхности металла всегда существует электрическое поле двойного слоя [6]. При температурах T , когда энергия связи атомов в зерне близка к нулю, поверхностные атомы приобретают в этом поле энергию, достаточную для распыления. Величина электрического поля E на поверхности металла, рассчитанная в модели ионного желе, по теории Томаса—Ферми, определяется выражением $E \approx 3\sqrt{P(T)}$ [3] ($P(T)$ — давление электронного газа). Для электрической силы F , действующей на поверхностные атомы зерна, справедливо выражение

$$F = eZ(T) E(T) = 3eZ^{3/2}(T) n^{1/2} [T^2 + (2\varepsilon_F/5)^2]^{1/4}. \quad (5)$$

При температуре электронов $T > T_1$, когда энергия связи равна нулю, сила, действующая на атомы поверхности зерна, определяется выражением (5). При $T \leq T_1$ необходимо учитывать наличие энергии связи $U(T)$. Из модельных оценок для вытягивающей силы F_v следует, что температура T_2 , при которой F_v становится равной нулю (при малых T электрического поля недостаточно, чтобы вытянуть атом с поверхности), составляет $\sim T_1/2$ и для F_v приемлема аппроксимация

$$F_v \approx F(T) \text{ при } T \geq T_2, \quad F_v = 0 \text{ при } T \leq T_2.$$

2. Распыление изолированного зерна

При температуре электронов $T \geq T_2$, когда энергия связи атомов равна нулю, распыление происходит под воздействием электрического поля двойного слоя. Вследствие распыления электроны зерна охлаждаются, и когда температура электронной компоненты станет равна T_2 , распыление полем прекратится.

Расстояние, на котором существенно воздействие электрического поля на заряд вблизи поверхности металла, рассчитанное в модели желе по теории Томаса—Ферми, составляет $\sim 3d$ (d — радиус Дебая). Атом, распыленный с поверхности, несет энергию $W = (3/2)Fd$, приобретенную при его движении в электрическом поле двойного слоя на расстоянии эффективного взаимодействия с поверхностью. Характерное время отлета распыляемого атома на расстояние $(3/2)d$ под действием усредненной по пространству электрической силы $F \approx F/2$ равно $\tau = (6Md/F(T))^{1/2}$.

Распыление полем электрического двойного слоя на поверхности металлического зерна описывается системой уравнений

$$\begin{aligned} dN/dt &= -3(4\pi/3)^{1/2} N^{2/3} \tau(T), \\ W(T) dN &= (3/2) Nd(Z(T)T), \end{aligned} \quad (6)$$

где N — полное число атомов в зерне.

Первое уравнение системы (6) описывает распыление атомов зерна в τ -приближении, второе учитывает охлаждение электронов зерна при распылении. Справедливость системы (6) ограничивается условием $t_{кр} \gg \tau$ ($t_{кр}$ — полное время распыления полем).

Учитывая конкретную зависимость $Z(T)$, $W(T)$, $\tau(T)$ от температуры T , для числа распыленных атомов зерна N_n можно получить приближенное выражение

$$\frac{N_n}{N_0} \approx \begin{cases} 1 - \left(\frac{3T_2/2\varepsilon_F + 1}{3T_0/2\varepsilon_F + 1} \right)^{2\sqrt{\pi}/5}, & T_0 \leq T_*, \\ 1 - \left(\frac{T_*}{T_0} \right)^{4\sqrt{\pi}/3} \left(\frac{\varepsilon_F}{T_*} \right)^{2\sqrt{\pi}/3} \left(\frac{3T_2}{5\varepsilon_F} + \frac{2}{5} \right)^{2\sqrt{\pi}/5}, & T_0 \geq T_*. \end{cases} \quad (7)$$

Для $t_{кр}$ справедливо

$$t_{кр} \approx \tau_0 \sqrt{2\pi} \left(\frac{3}{4\pi} \right)^{1/3} \left(\frac{2}{3} \right)^4 N_0^{1/3} * \begin{cases} \frac{1}{2} \ln \left(\frac{T_*}{T_2} \right) + \left(1 - \frac{T_*}{T_0} \right), & T_0 \geq T_*, \\ \frac{1}{2} \ln \left(\frac{T_0}{T_2} \right), & T_0 \leq T_*, \end{cases} \quad (8)$$

где

$$\tau_0 = (2M/Z_0^2 \sqrt{\pi} n e^2)^{1/2}.$$

Температура T_0 электронов существенно зависит от размеров зерна. Зависимости $N_n(R)$ и $t_{кр}(R)$ можно получить подстановкой $T_0(R)$ из (2) в (7) и (8). Выражения (7), (8) верны при $R \leq R_2$ ($T_0(R_2) = T_2$), т. е. когда $T_0 > T_2$ (для золота $R_2 \sim 85 \text{ \AA}$, для урана $R_2 \sim 55 \text{ \AA}$).

Приведенный расчет основывается на предположении, что время распыления $t_{кр} \ll t_2$ — времени электрон-фононной релаксации ($t_2 \sim 10^{-9} \div 10^{-10}$ с). Так как $t_{кр \text{ max}}$ составляет для золота $\sim 6 \cdot 10^{-13}$ с, для урана $\sim 3 \cdot 10^{-13}$ с, то можно пренебречь нагревом решетки за время распыления полем электрического двойного слоя.

Справедливость τ -приближения в системе (6) основывается на соотношении $t_{кр} \gg \tau$ (τ — время распыления одного атомного слоя). Из сравнения τ и $t_{кр}$ ($\tau_{Au} \leq 10^{-13}$ с, $\tau_U \leq 7 \cdot 10^{-14}$ с) следует, что $t_{кр} > \tau$ и τ -приближение справедливо практически во всем диапазоне радиусов зерен, в котором существенно распыление полем электрического двойного слоя.

Зависимости коэффициента распыления полем электрического двойного слоя S от радиуса распыляемого зерна R приведены на рис. 1. Распыление полем существенно для зерен $R_{Au} \leq 85 \text{ \AA}$, $R_U \leq 55 \text{ \AA}$. Максимальный коэффициент распыления составляет $S \sim 10^3$ при $20 \text{ \AA} \leq R \leq 50 \text{ \AA}$ для урана и $S \sim (4 \div 6) \cdot 10^3$ при $30 \text{ \AA} \leq R \leq 70 \text{ \AA}$ для золота.

Если температура электронной компоненты мала ($T < T_2$), то распыление полем электрического двойного слоя невозможно. В этом случае распыление происходит в результате нагрева решетки электронами и испарения атомов с поверхности. Зерно охлаждается испарением и излучением (с характерным

временем $t_3 = 3Rn/2\sigma\Theta_0^3$; σ — постоянная Стефана—Больцмана, $t_3 > 10^{-8}$ с — времени излучательного перехода).

При больших размерах зерна ($R \geq R_2$), когда оно распыляется только испарением, начальная температура Θ_0 определяется выражением

$$\Theta_0 = \alpha (dE/dx)/2\pi n R_2.$$

При $R \leq R_2$ процесс нагрева решетки становится существенным после прекращения распыления полем электрического двойного слоя и температура равна

$$\Theta_0 = \alpha (dE/dx)/2\pi n R_2^2.$$

При большой температуре зерна охлаждение испарением эффективнее, чем остывание излучением. В этом случае испарение атомов с поверхности зерна описывается системой уравнений

$$\frac{3}{2} N \frac{d\Theta}{dN} = U - \frac{3}{2} \Theta, \quad (9)$$

$$dN/dt = -3(4\pi/3)^{1/3} v_i N^{2/3} \eta(\Theta), \quad (10)$$

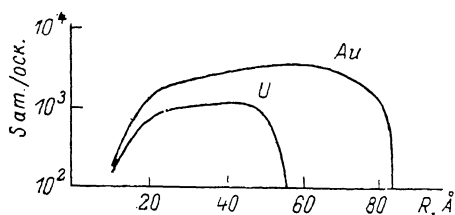


Рис. 1.

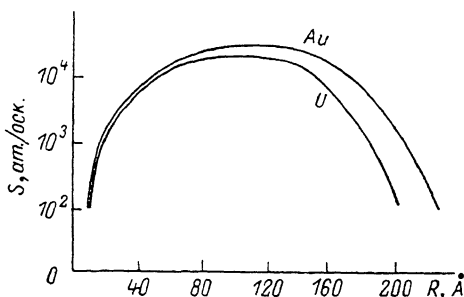


Рис. 2.

где ν — частота колебаний атомов перпендикулярно поверхности ($\nu \sim 10^{13}$ с $^{-1}$), $\eta(\Theta)$ — вероятность испарения атома за период одного колебания

$$\eta(\Theta) = (1 + U/\Theta) e^{-U/\Theta}.$$

При большой температуре зерна Θ сначала падает быстро (характерное время испарения существенно меньше, чем t_3), а по мере уменьшения температуры эффективность испарения падает, и при достижении температуры Θ_k основным механизмом остывания становится излучение. Число испаренных в дальнейшем атомов составит небольшую поправку к коэффициенту распыления. Полное число распыленных атомов равно (из (9))

$$\Delta N = N_0 \left(1 - \frac{1 - 3\Theta_0/2U}{1 - 3\Theta_k/2U} \right). \quad (11)$$

Конечная температура Θ_k слабо зависит от размера зерна и равна $\sim (1/19 \div 1/21) U$ ($\Theta_0 \gg \Theta_k$).

Таким образом, при $\Theta_0 \gg U/20$ число испаренных атомов определяется выражением (11) с $\Theta_k = U/20$. В другом предельном случае, когда $\Theta_0 \ll U/20$, охлаждение испарением малоэффективно и остывание происходит преимущественно излучением. В этом случае число испаренных атомов определяется приближенным выражением

$$\Delta N \simeq 3(4\pi/3)^{1/3} v_i N_0^{2/3} (U/\Theta_0) e^{-U/\Theta_0} (3Rn/2\sigma\Theta_0^3). \quad (12)$$

Решения (11) и (12) следует считать при $\Theta_0 \sim U/20$.

В работе [3] показано, что коэффициент распыления монокристаллов $S \sim 10 \div 10^2$. В этом случае основную роль играют процессы, происходящие при релаксации трека в результате теплопроводности. При $\Delta N \sim 10^2$ предположе-

ние о несущественности этих процессов становится неверным, и качественную зависимость S от радиуса зерна R можно получить, «пришивая» кривую для монокристаллов к решению (12). Таким образом, распыление микрочастиц доыколом деления происходит двумя механизмами: полем электрического двойного слоя на поверхности зерна и испарением. При малых размерах зерен ($R \leq R_2$, $R_{2Au} \approx 85 \text{ \AA}$, $R_{2U} \approx 55 \text{ \AA}$) распыление происходит обоими указанными механизмами. Большие зерна распыляются испарением (при $R \geq R_2$).

На рис. 2 показана зависимость коэффициента распыления S от радиуса зерна R для золота и урана. При $R \leq 30 \text{ \AA}$ зерно распыляется практически полностью. В широком диапазоне изменения R величина S меняется слабо (для золота $S \sim (1 \div 5) \cdot 10^4$ при $40 \text{ \AA} \leq R \leq 180 \text{ \AA}$, для урана $S \sim (1 \div 3) \cdot 10^4$ при $40 \text{ \AA} \leq R \leq 130 \text{ \AA}$). При $R \geq 200 \text{ \AA}$ (U) и $R \geq 250 \text{ \AA}$ (Au) распыление зерен происходит, как у монокристаллов [3].

3. Распыление мелкодисперсных покрытий

При создании мелкодисперсных покрытий площадь соприкосновения зерна и подложки существенно зависит от способа их получения. Эту площадь удобно характеризовать отношением $\beta = l_2/l_1$ (l_2 — характерный размер пятна соприкосновения, l_1 — размер зерна). При сферической конфигурации изучаемых частиц величина β минимальна и при $R \gg a$ равна $\sqrt{2a/R}$ (R — радиус зерна, $a \sim 2 \text{ \AA}$ — межатомное расстояние). При заданном R величина β может меняться в пределах от β_{\min} до 1.

Параллельно с процессами распыления идет отвод выделившейся энергии в подложку. При размере распыляемой микрочастицы, меньшем некоторого критического L , возможен отрыв зерна от подложки как целого в результате образования микротрещины на границе соприкосновения [3]. Вследствие интенсивного испарения атомов с образующих ее границ микротрещина будет проводить тепло. Когда ее размеры существенно увеличатся, тепловой контакт будет нарушен. В качестве характерного времени отделения микрочастицы можно взять время отделения зерна на межатомное расстояние a [3]

$$\tau_x = 2Ms \frac{a}{\epsilon} \left(\frac{R}{R_0} \right)^3$$

($R_0 \sim 10 \text{ \AA}$ — размер пятна интенсивного энерговыделения [3]; s — скорость звука; $\epsilon \sim 3 \text{ эВ}$ — энергия, приобретаемая пограничными атомами в области энерговыделения). Как будет показано ниже, характерные времена распыления зерна на подложке много меньше τ_x .

Процесс теплоотвода из зерна постоянного радиуса при $\gamma = \text{const}$ моделировался на ЭВМ. Полученная численно зависимость средней температуры зерна \bar{T} от времени допускает простую аппроксимацию

$$\bar{T} = \bar{T}_0 \exp \left\{ -0.63t \frac{\beta^{5/2} \chi}{R^2} \right\}. \quad (13)$$

Из численного расчета следует, что величина градиента температуры в зерне мала и описание в терминах средней температуры оправдано. Зависимость (13) с погрешностью 5 % совпадает с численно полученными кривыми. Из (13) следует, что характерное время τ_Δ микрочастицы существенно зависит от R и β .

При температуре $T < \epsilon_F$ приближение постоянной температуропроводности для τ_Δ неприменимо и следует учитывать зависимость χ от T . В этом случае для величины τ_Δ справедлива оценка сверху

$$\tau_\Delta = 1.6R^2/\beta^2 h \chi(T_0), \quad (14)$$

где $T_0 = T_0(R)$ из (2). Так как $\partial\gamma/\partial T < 0$ при $T \leq \epsilon_F$, время остывания зерна будет несколько меньше, чем τ_Δ , полученное в (14). Используя $\chi(T)$ [5], можно получить, что при рассматриваемых размерах зерна $\tau_\Delta \ll 10^{-10}$ с.

В случае, когда τ_{Δ} значительно меньше, чем характерное время распыления, коэффициент распыления зерна не превышает $S \sim 10 \div 10^2$ для монокристаллических образцов.

Ранее было показано, что испарение атомов с поверхности зерна со стороны малых времен ограничивается временем электрон-фононной релаксации t_1 . Так как $t_1 \gg \tau_{\Delta}$, то поверхность зерна не успевает испариться.

При большой температуре электронов ($T \gg T_2$) зерно распыляется полем электрического двойного слоя на поверхности металла. При этом температуропроводность χ практически постоянная и составляет $\sim 3 \text{ см}^2/\text{с}$. В случае распыления полем отношение времени распыления $t_{\text{кр}}$ ко времени теплоотвода из зерна τ_{Δ} сильно зависит от R и β . Существует область величин R и β , при которых теплоотвод несуществен и распыление происходит, как и в случае изолированного зерна ($\tau_{\Delta} \gg t_{\text{кр}}$). При $\tau_{\Delta} \ll t_{\text{кр}}$, теплоотвод настолько эффективен, что зерно не распыляется. Существует, конечно, переходная область величин R и β , при которых $\tau_{\Delta} \sim t_{\text{кр}}$. Критический радиус $R_{\text{кр}}$, определяющий смену режимов, можно найти из уравнения

$$\tau_{\Delta}(R_{\text{кр}}, \beta) = t_{\text{кр}}(R_{\text{кр}}). \quad (15)$$

Качественно можно положить, что при $R \leq R_{\text{кр}}$ зерно не распыляется ($\tau_{\Delta} \leq t_{\text{кр}}$, эффективный теплоотвод); при $R \geq R_{\text{кр}}$ распыление происходит,

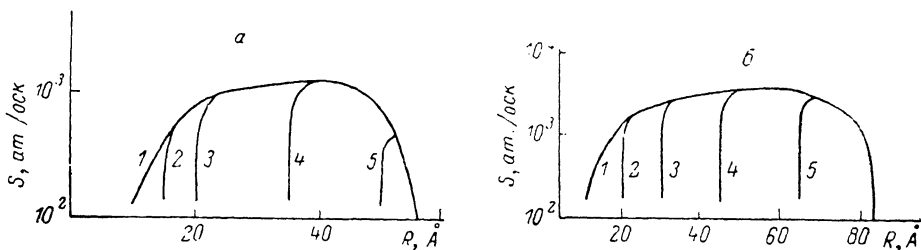


Рис. 3.

как и в случае изолированного зерна ($\tau_{\Delta} \gg t_{\text{кр}}$). Так как $t_{\text{кр}}$ слабо зависит от R , то с достаточной точностью величина $R_{\text{кр}}$ определяется выражением

$$R_{\text{кр}} = (\bar{t}_{\text{кр}} \cdot 0.63\chi)^{1/2} \beta^{3/4} \quad (16)$$

($\bar{t}_{\text{кр}} \approx 4 \cdot 10^{-13}$ с для золота, $\bar{t}_{\text{кр}} \approx 2.4 \cdot 10^{-13}$ с для урана).

В случае сферической конфигурации зерна $\beta = \beta_{\text{мин}}$ и является функцией радиуса R . Величина $R_{\text{кр}}^*$, которая характеризует смену режимов (есть распыление — нет распыления), в случае минимальной тепловой связи микрочастицы и подложки составляет $\sim 30 \text{ \AA}$ для золота и $\sim 20 \text{ \AA}$ для урана.

Таким образом, при каждом β существует величина $R_{\text{кр}}(\beta)$. При $R > R_{\text{кр}}$ коэффициент распыления S равен соответствующей величине при распылении полем. При $R \leq R_{\text{кр}}$ остывание зерна в результате теплопроводности эффективно и распыление отсутствует.

На рис. 3 показаны зависимости уранового (а) и золотого (б) зерна от R при $\beta = 0$ (1), 0.3 (2), 0.4 (3), 0.6 (4), 0.8 (5).

Помимо распыления мелкодисперсных покрытий на отдельные атомы, возможно распыление в виде целых зерен в результате микровзрыва на границе зерно—подложка [3]. Таким образом, масс-спектр продуктов распыления мелкодисперсных покрытий осколком деления содержит как целые зерна $\leq 100 \text{ \AA}$ [3], так и отдельные атомы, причем средняя энергия последних при малых размерах зерна R (распыление электрическим полем) составляет 1—3 эВ, а при больших размерах зерен (когда существен механизм испарения) ~ 0.3 эВ.

В заключение автор выражает искреннюю благодарность Ю. В. Мартыненко и Ю. Н. Явлинскому за предложенную тему и многочисленные полезные обсуждения.

Литература

- [1] Баранов И. А., Кривохатский А. С., Обнорский В. В. ЖТФ, т. 51, № 12, с. 2457—2475.
- [2] Баранов И. А., Обнорский В. В. ВАНТ. Сер. Физика радиационных повреждений, 1981, в. 5 (19), с. 1—96.
- [3] Мартыненко Ю. В., Явлинский Ю. Н. Препринт ИАЭ-4084/11. М., 1985, с. 12.
- [4] Готт Ю. В. Взаимодействие частиц с веществом в плазменных исследованиях. М., Атомиздат, 1978, с. 272.
- [5] Мартыненко Ю. В., Явлинский Ю. Н. ДАН СССР. Сер. физ., 1983, т. 270, № 1, с. 88—91.
- [6] Frenkel J. I. Zeitschrift für Physik, 1928, v. 51, p. 232—238.

Поступило в Редакцию
17 июля 1986 г.
