

05,11,12

Полевая ионная микроскопия каскадов атомных смещений в металлах и сплавах после радиационных воздействий разного типа

© В.А. Ивченко

Уральский федеральный университет им. первого президента России Б.Н. Ельцина,
620002 Екатеринбург, Россия
Институт электрофизики УрО РАН,
620016 Екатеринбург, Россия
e-mail: ivchenko@ier.uran.ru

(Поступило в Редакцию 14 февраля 2014 г.)

Представлены экспериментальные результаты атомно-пространственного изучения радиационного дефектообразования в приповерхностных объемах материалов, инициированных нейтронным облучением — Pt: $E > 0.1$ MeV и ионной имплантацией — Cu_3Au : $E = 40$ keV, $F = 10^{16}$ ion/m², $j = 10^{-3}$ A/cm². Приведены количественные оценки размеров, формы и объемной доли каскадов атомных смещений, образующихся при различных видах облучения в приповерхностных слоях материалов. Показано, что средний размер радиационных кластеров после облучения платины до флюенса быстрых нейтронов $6.7 \cdot 10^{22}$ m⁻² ($E > 0.1$ MeV) имел величину порядка 3.8 nm. Экспериментально установленный средний размер радиационного кластера (разупорядоченной зоны) в сплаве после ионного облучения составил величину $4 \times 4 \times 1.5$ nm.

Развитие современных технологий, совершенствование имеющихся и проектирование новых источников энергии требуют, чтобы конструкционные материалы вырабатывали свой ресурс при различных внешних воздействиях, в том числе и при облучении быстрыми частицами. Основным фактором, ограничивающим ресурс эксплуатации конструкционных материалов атомной техники, является радиационное распухание. Радиационные кластеры, формирующиеся при облучении в процессе эволюции каскадов атомных смещений, являются областями сильных упругих искажений, влияют на движение дислокаций при деформации, вызывают радиационное упрочнение, снижение пластичности, изменение характеристик упругости. Для количественного анализа влияния облучения на структуру и физико-механические свойства сплавов крайне необходима информация о таких характеристиках радиационных кластеров, как концентрация, размеры, внутренняя структура, количество содержащихся в них точечных дефектов.

Настоящая работа посвящена экспериментальному исследованию фундаментальных физических процессов в твердом теле, инициированных взаимодействием как потоков заряженных газовых ионов (Ar^+), так и нейтронов с веществом.

Основная цель заключалась в изучении радиационных дефектов на атомно-чистой поверхности и в объеме материалов, инициированных нейтронным облучением — Pt (99.99): $E > 0.1$ MeV и ионной имплантацией сплава Cu_3Au в упорядоченном состоянии: $E = 40$ keV, $F = 10^{16}$ ion/m², $j = 10^{-3}$ A/cm², методами полевой ионной микроскопии (ПИМ).

ПИМ позволяет проводить прецизионное исследование изменений, происходящих в результате облучения приповерхностных атомных слоев кристаллической решетки металлов и сплавов, в атомном масштабе. В то же время метод дает возможность анализировать структуру

образца в объеме путем управляемого последовательного удаления поверхностных атомов электрическим полем.

В настоящей работе представлены результаты прямого изучения радиационного дефектообразования в приповерхностных объемах указанных выше материалов методом ПИМ. Предполагалось провести количественные оценки размеров, формы и объемной доли кластеров, образующихся при различных видах облучения в приповерхностных слоях материалов. Режимы облучения были подобраны таким образом, чтобы образующиеся кластеры (или обедненные зоны) не перекрывались в результате взаимодействия частиц с веществом.

Предназначенные для исследования образцы готовились в виде игольчатых эмиттеров с радиусом кривизны при вершине 30–50 nm из проволочных заготовок и штапиков путем электрохимического полирования. Полевые эмиттеры, аттестованные для ионного облучения, имели атомно-гладкую поверхность вершины острия, близкую полусферической. Такую атомно-чистую поверхность получают *in situ* полевым испарением поверхностных атомов. Имплантированные после предварительной аттестации образцы-острия вновь помещали в ПИМ для изучения объема сплава. Напротив, образцы-острия Pt изготавливались из облученных заготовок. Заготовки под образцы из Pt представляли собой проволочные отрезки диаметром 0.2 mm и длиной 20 mm. Их облучали в реакторе ИББ-2М при $T = 310$ K в течение 1 h до флюенса быстрых нейтронов ($E > 0.1$ MeV) $6.7 \cdot 10^{22}$ m⁻². В камеру ПИМ помещали образцы-острия с радиусом кривизны при вершине 10–30 nm, изготовленные путем электрохимического полирования, и, фиксируя регистрирующей аппаратурой (фото- или видеокамерой) ионные изображения поверхности при контролируемом удалении атомных слоев, анализировали структурное состояние сплава в объеме.

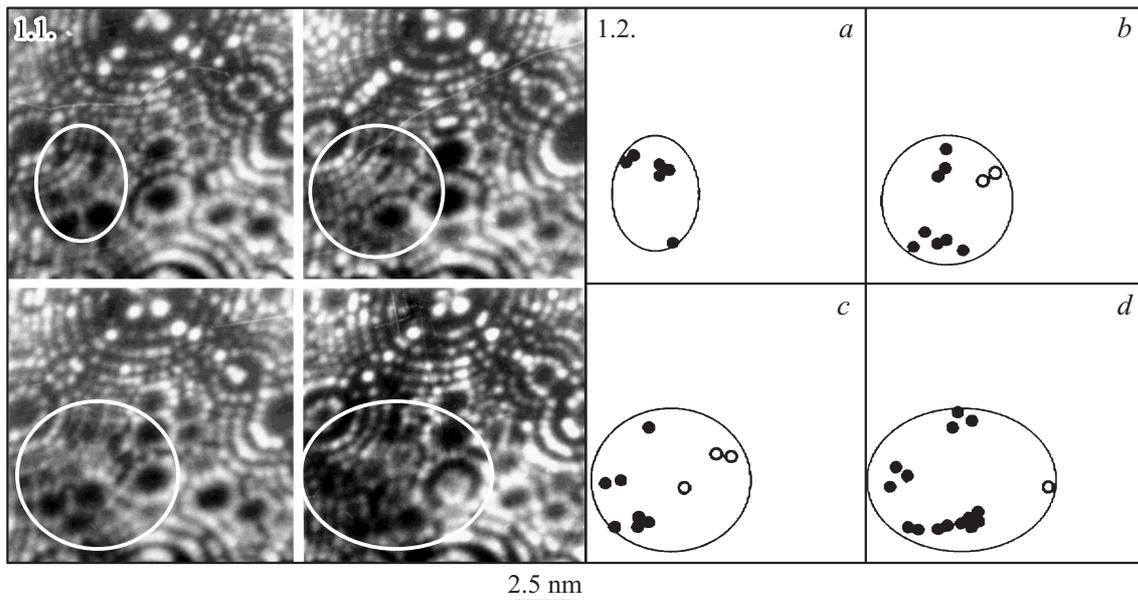


Рис. 1. Участки последовательно полученных полевых ионных изображений поверхности облученной нейтронами платины (1.1) и соответствующая схема пространственного распределения дефектов (1.2). Отмечена обедненная зона в процессе последовательного контролируемого удаления атомных слоев (ас): *a* — исходное, *b* — отличается от *a* на 1 ас, *c* — отличается от *b* на 2 ас, *d* — отличается от *c* на 2 ас. ● — вакансия, ○ — междоузельный атом.

Полевой ионный микроскоп был снабжен микроканальным усилителем яркости, хладагентом служил, как правило, жидкий азот ($T = 78 \text{ K}$), в качестве изображающего газа использовали неон.

С целью изучения атомной структуры дефектов, образующихся в областях единичных каскадов смещений, атомно-упорядоченный сплав Cu_3Au облучали перпендикулярно оси острия-образца с $E = 40 \text{ keV}$; при плотности ионного тока $j = 10^{-3} \text{ A/cm}^2$ и длительности импульса $\tau = 10^{-3} \text{ s}$ доза составила величину $D \sim 6 \cdot 10^{16} \text{ ion/m}^2$. Это обеспечило попадание в среднем одного иона на участок поверхности размером $4 \times 4 \text{ nm}$. В результате анализа полученных ионных микрокартин поверхности были обнаружены такие радиационные нарушения, как разупорядоченные зоны (РЗ) и сегрегации атомов меди [1]. Средний размер РЗ, определенный по данным исследования четырех образцов, составил величину $4 \times 4 \times 1.5 \text{ nm}$. РЗ идентифицировались как нарушения кольцевой структуры изображения поверхности атомно-упорядоченного сплава, контраст которого подобен ионному контрасту поверхности чистого металла, потому что создается только атомами золота в упорядоченном состоянии сплава Cu_3Au . Контраст радиационных нарушений сохранялся при полевом испарении поверхностных атомов на глубину залегания РЗ. Экспериментально установленный средний размер РЗ по порядку величины совпадал с расчетным значением диаметра каскада смещений ($5\text{--}11 \text{ nm}$), который оценивался как средний пробег ПВА и в приближении шарообразной формы каскадной области. Реальный же размер каскадных областей (с учетом среднего пробега выбитых из сердцевины каскада атомов, занимающих

междоузлия и не всегда надежно идентифицируемых методом ПИМ), по-видимому, несколько больше экспериментально измеренного.

В процессе исследования удалось обнаружить только сегрегации атомов меди. Поскольку атомы меди не дают видимого изображения на ионных микроснимках поверхности, то контраст от медной сегрегации наблюдается как темная область. Скопления или сегрегации атомов меди трехмерны и содержат, как правило, 200–500 атомов. Наличие вакансий в этих скоплениях экспериментально определить практически не удастся, хотя из анализа ионного контраста границ темных областей очевидно, что возможное их количество незначительно.

В результате нейтронного облучения Pt до $6.7 \cdot 10^{21} \text{ m}^{-2}$ ($E > 0.1 \text{ MeV}$) структурное состояние чистого металла изменилось, о чем свидетельствует рис. 1.1, регистрирующий атомно-чистую поверхность облученной платины. На микрофотографиях отмечены дефектные участки поверхности, которые являются результатом взаимодействия нейтронов с атомами кристаллической решетки. Обнаруженные в процессе поштучного удаления поверхностных атомов платины электрическим полем дефекты, как правило, представляли собой отдельные вакансии, небольшие вакансионные комплексы, смещенные из положений равновесия (узлов кристаллической решетки) отдельные атомы [2].

В процессе изучения структурного состояния чистой Pt после нейтронного облучения при увеличении флюенса до $6.7 \cdot 10^{22} \text{ m}^{-2}$ ($E > 0.1 \text{ MeV}$) было обнаружено присутствие большого количества нарушений кристаллической решетки, что с очевидностью демон-

стрирует рис. 1.1. В результате контролируемого удаления поверхностных атомов платины электрическим полем помимо единичных точечных дефектов и их скоплений были обнаружены радиационные кластеры, которые представляли собой трехмерные „рыхлые“ области, содержащие большое количество точечных дефектов (отдельные вакансии, межузельные атомы, а также небольшие вакансионные комплексы). На рис. 1.1 приведен ионный контраст типичного реального пространственного распределения нарушений кристаллической решетки Pt после взаимодействия с пучками быстрых нейтронов в процессе контролируемого удаления поверхностных атомов. Соответствующая схематическая карта представлена на рис. 1.2. Анализ ионного контраста рассматриваемой дефектной области показал, что последняя представляет собой обедненную зону (область с локально повышенной концентрацией вакансий) с „поясом“ межузельных атомов. Это наблюдение подтверждает гипотезу [3], согласно которой в металле каскад развивается так, что из центральной его части (наиболее возмущенной области) выносятся большое число атомов посредством цепочек замещений. По нашим оценкам средняя концентрация вакансий в обедненных зонах составила 9%, а концентрация межузельных атомов — 1.5%.

В работе была предпринята попытка выяснить пространственную геометрию обедненных зон в облученной до флюенса быстрых нейтронов $6.7 \cdot 10^{22} \text{ m}^{-2}$ ($E > 0.1 \text{ MeV}$) платине. Форма обедненных зон анализировалась в стандартном режиме путем контролируемого испарения атомных слоев электрическим полем, с целью определения характерной анизотропии. В результате количественного анализа геометрии дефектных областей какой-либо анизотропии формы обедненных зон обнаружено не было. Из полученных данных следует, что конфигурация зон не соответствует какой-либо простой геометрической фигуре, так как вакансии, их составляющие, расположены крайне нерегулярно.

Изучение большого количества микроснимков поверхности облученной платины позволило измерить размеры нарушенных областей (определенные либо на основании расчета локальных радиусов кривизны вершины эмиттера и соответствующих линейных расстояний, либо путем подсчета испаренных полем атомных слоев), построить гистограмму их распределения по размерам (рис. 2) и определить среднее значение диаметра радиационного кластера, которое составило 3.8 nm.

Помимо размерных характеристик кластеров оценивалась их концентрация. Экспериментально измеренная плотность таких радиационных нарушений в объеме составила $4 \cdot 10^{24} \text{ m}^{-3}$.

После облучения платины до флюенса быстрых нейтронов $6.7 \cdot 10^{21} \text{ m}^{-2}$ ($E > 0.1 \text{ MeV}$) формировалась дефектная структура, которая характеризовалась повышенной концентрацией единичных точечных дефектов и их комплексов с размерами, сравнимыми с межатомным расстоянием. При повышении флюенса до $6.7 \cdot 10^{22} \text{ m}^{-2}$

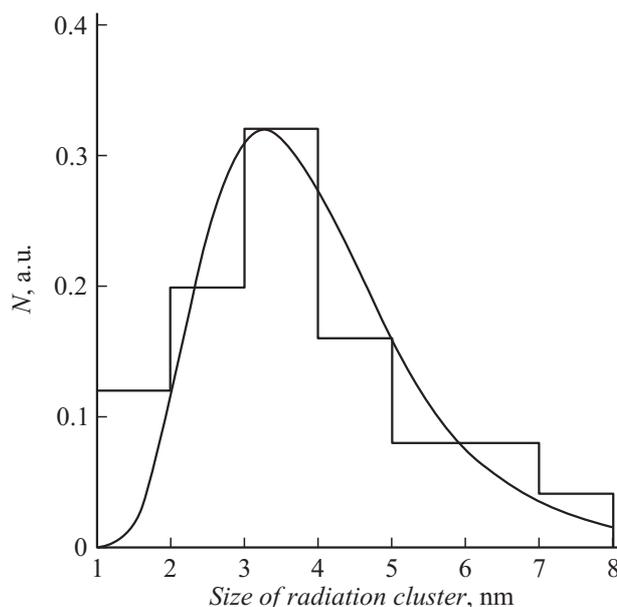


Рис. 2. Распределение радиационных кластеров по размерам в платине, облученной нейтронами ($6.7 \cdot 10^{22} \text{ m}^{-2}$).

в облученной платине возникали радиационные кластеры (обедненные зоны с „поясом“ межузельных атомов), средний размер которых составил 3.8 nm.

В результате работы получены данные прямого изучения радиационного дефектообразования в приповерхностных объемах указанных выше материалов методом ПИМ. Проведены количественные оценки размеров, формы и объемной доли кластеров, образующихся при различных видах облучения в приповерхностных слоях материалов. В атомном масштабе проведен анализ дефектов различного типа, как возникших в упорядоченных твердых растворах вследствие имплантации газовых ионов, так и при взаимодействии металлов с нейтронным облучением, и обусловленных развитием единичных каскадов атомных смещений и протекающими релаксационными процессами радиационно-стимулированной диффузии и сегрегации.

Работа выполнена при поддержке Уральского отделения РАН, программа ОФН РАН № 5 (проект № 12-T-2-1004) „Физика новых материалов и структур“.

Список литературы

- [1] Бункин А.Ю., Ивченко В.А., Кузнецова Л.Ю. и др. // ФММ. 1990. № 7. С. 111–118.
- [2] Ивченко В.А., Медведева Е.В., Овчинников В.В. // Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования. 2009. № 8. С. 26–32.
- [3] Seeger A.K. Proc. of the 2nd Intern. Conf. on the Peaceful Uses of Atomic Energy. United Nations. Geneva. 1958. V. 1. P. 2503.