

РАЗДЕЛ ВТОРОЙ

ФИЗИКА РАДИАЦИОННЫХ ПОВРЕЖДЕНИЙ И ЯВЛЕНИЙ В ТВЕРДЫХ ТЕЛАХ

УДК 621.039.52

ВЛИЯНИЕ ОБЛУЧЕНИЯ ТЯЖЕЛЫМИ ИОНАМИ ВЫСОКИХ ЭНЕРГИЙ НА СТРУКТУРНЫЕ ИЗМЕНЕНИЯ В АМОРФНЫХ СПЛАВАХ

*А.Ю. Дидык¹, Л.И. Иванов², В.К. Семина¹, А.Л. Суворов³, А.С. Федотов³,
Ю.Н. Чеблуков³, В.А. Алтынов¹*

*¹Объединенный институт ядерных исследований, Лаборатория ядерных
реакций им. Г.Н. Флерова, 141980, г. Дубна, Россия;*

²Институт металлургии им. А.А. Байкова РАН, 117911, г. Москва;

*³ГНЦ РФ "Институт теоретической и экспериментальной физики",
117259, г. Москва, Россия*

Представлены экспериментальные данные по влиянию облучения тяжелыми ионами в режиме высоких ионизационных потерь энергии на поверхности ряда аморфных сплавов. Показано, что все изученные сплавы испытывают значительное распухание, например, для сплава $\text{Ni}_{58}\text{Nb}_{42}$ оно составило 15% после облучения ионами ^{86}Kr с энергией 305 МэВ при флюенсе 10^{15} ион/см². Использовано несколько выражений для расчета температур на оси траектории иона. Показано, что рассчитанные температуры превышают не только температуру плавления, но и испарения сплавов. На основе температурных расчетов и выполненных измерений продемонстрировано, что распыление–испарение атомов аморфных сплавов имеет место.

1. ВВЕДЕНИЕ

Исследования структуры и других свойств аморфных металлических сплавов при облучении тяжелыми ионами представляют значительный интерес по целому ряду причин.

Прежде всего, явления, вызванные облучением, интересны, поскольку развиваются в неупорядоченных системах при отсутствии дальнего порядка в расположении атомов.

Изучению аморфных сплавов при облучении и послерадиационной обработке посвящено достаточно большое количество работ [1–7]. Тем не менее, большой ясности в понимании основных закономерностей не установлено. Основные выводы из работ [1–7]:

1. При облучении аморфных сплавов происходит увеличение размеров образца в направлениях, перпендикулярных падающему ионному пучку, и сокращение в направлении пучка.
2. Объем образца при облучении не меняется.
3. Процессы распыления поверхности практически отсутствуют (отметим, что температура образца в этих работах не превышала 15 К).

Необходимо отметить, что детальных исследований влияния облучения тяжелыми ионами с высокими неупругими потерями энергии не проводилось.

Цель этой работы – изучение закономерностей основных явлений, вызванных облучением тяжелыми ионами с предельно высокими удельными иони-

зационными потерями энергии в диапазоне флюенсов в аморфных металлических сплавах $\text{Ni}_{58}\text{Nb}_{42}$ и $\text{Fe}_{77}\text{Ni}_2\text{Si}_{14}\text{B}_7$. К таким явлениям относятся: распыление (испарение) исходного сплава, изменение структуры поверхности, процессы типа распухания и т.д.

2. МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

Образцы аморфных сплавов $\text{Ni}_{58}\text{Nb}_{42}$ и $\text{Fe}_{77}\text{Ni}_2\text{Si}_{14}\text{B}_7$, полученные стандартным образом и подготовленные для облучения, были облучены ионами ^{86}Kr с энергией 245 МэВ флюенсами $F \cdot t = 10^{13}$, 10^{14} и 10^{15} ион/см² или ионами ^{209}Bi с энергией 705 МэВ флюенсами $F \cdot t = 10^{12}$ и 10^{13} ион/см². Температура облучения не превышала 100°C, поскольку образцы крепились к поверхности охлаждаемой проточной водой подложки теплопроводящим клеем.

Облучение было выполнено на установке ионного облучения материалов на ускорителе тяжелых ионов У-400 ЛЯР им. Г.Н. Флерова, описанной в работах [8, 9]. Средний поток ионов не превышал 5×10^{10} ион/см²·с. Для достижения однородного облучения по поверхности использовались системы сканирования пучка по вертикали и горизонтали. При изучении изменений структуры поверхности облученных образцов аморфных сплавов применялись методы сканирующий электронной (СЭМ) и туннельной (СТМ) микроскопии.

На рис.1 показаны фотографии структуры поверхности образца аморфного сплава $Ni_{58}Nb_{42}$ до (а) и после (б) облучения, полученные методом СЭМ. На поверхности исходной фольги имеются застывшие капли расплава (неоднородности структуры), образующиеся при изготовлении аморфной ленты. Видно, что после облучения поверхность аморфного сплава претерпела заметные изменения.

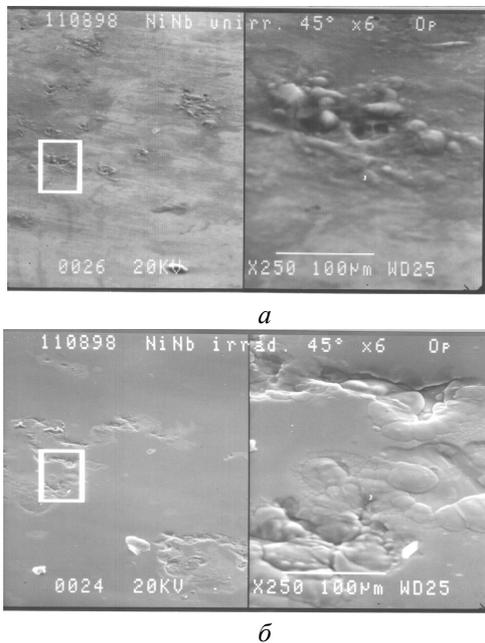


Рис.1. Поверхность аморфного сплава $Ni_{58}Nb_{42}$: а – необлученная поверхность; б – поверхность, облученная ионами ^{86}Kr с энергией 245 МэВ до флюенса $F \cdot t = 1 \times 10^{15}$ ион/см². На правой части фотографий а и б показаны выделенные области с дополнительным шестикратным увеличением

На рис.2 приведена фотография образца аморфного сплава $Ni_{58}Nb_{42}$, полученная с использованием СЭМ, а облучение осуществлялось через "маску" в виде фольги толщиной, превышающей пробег ионов ^{86}Kr с энергией 245 МэВ и ионов ^{209}Bi с энергией 705 МэВ. На левой части фотографии видна необлученная область, перекрытая "маской", справа – облученная часть образца. Хорошо видна граница раздела обеих зон.

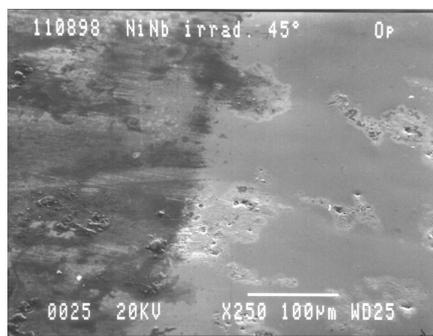


Рис.2. Структура поверхности образца сплава $Ni_{58}Nb_{42}$, частично перекрытого фольгой, поглощающей ионы криптона (левая часть), и облученного ионами ^{86}Kr с энергией 245 МэВ до флюенса $F \cdot t = 1 \times 10^{15}$ ион/см². Видна граница раздела

На рис.3 изображена структура поверхности аморфного сплава $Ni_{58}Nb_{42}$ в исходном состоянии и после облучения ионами ^{86}Kr с энергией 245 МэВ до флюенса $F \cdot t = 1 \times 10^{15}$ ион/см², полученная методом СТМ высокого разрешения.

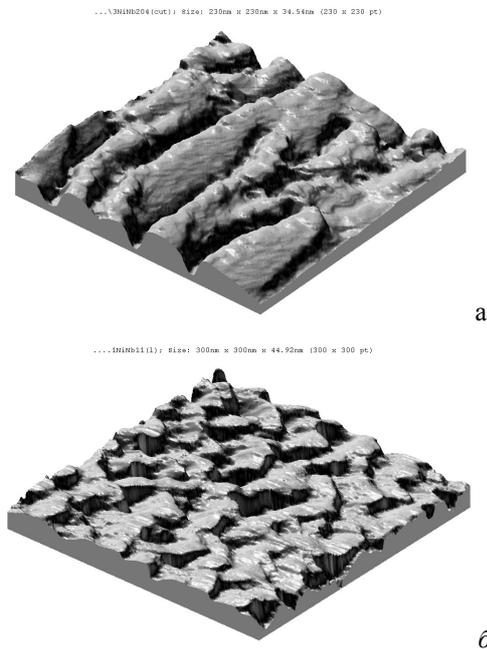


Рис.3. Поверхность аморфного сплава $Ni_{58}Nb_{42}$ в исходном состоянии (а – размер изображения $300 \times 300 \times 44,92$ нм) и после облучения ионами ^{86}Kr с энергией $E = 245$ МэВ до флюенса $F \cdot t = 1 \times 10^{15}$ ион/см² (б – размер изображения 230 нм \times 230 нм \times $34,54$ нм). Изображения получены с помощью СТМ

3. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Как видно, после облучения при практически комнатной температуре ($T < 300$ К) аморфные сплавы претерпели сильное изменение. В частности, как это хорошо видно, участки поверхности с "каплями расплава" практически сохранили свое положение на поверхности, а лежащая рядом, более гладкая поверхность в результате распухания образца сместились в направлении падения ионного пучка так, что "капли расплава" оказались как бы погруженными в окружающие их распухшие области образцов. Отсюда можно сделать вывод о том, что так называемые "капли расплава" имеют другую структуру и, возможно, иной элементный состав.

Измеренная степень распухания образцов составляет при флюенсе ионов ^{86}Kr (245 МэВ) $F \cdot t = 1 \times 10^{15}$ ион/см² примерно $\Delta V/V \sim 15\%$. Это обстоятельство кажется довольно-таки странным, так как происходит при низкой температуре облучения, при достижении относительно низких доз повреждений и в материале, в котором нет дальнего порядка в расположении атомов, т.е. нет кристаллической решетки.

Следует также отметить, что изменился и химический состав облученных образцов, оцененный методом рентгенофлуоресцентного анализа. В частности, для флюенса $F \cdot t = 1 \times 10^{15}$ ион/см² состав сплава

выражается как $Ni_{58-x}Nb_{42+x}$, где $x=1,60$, а для $F \cdot t=1 \times 10^{14}$ ион/см² $x=1,48$. Заметим, что обнаруженное различие относительно небольшое, тем не менее оно находится за пределом ошибок измерения состава.

Следует заметить также, что при изменении состава изучаемая область достаточно большая и по площади и по глубине, в изучаемой области имеются вкрапления "капель расплава" явно другого элементного состава (см. рис.1 и 2), и область изменения состава по глубине также не может быть большой. По-видимому, толщина слоя, в котором изменяется состав, определяется зоной испарения атомов сплава при облучении ионами.

То есть, можно сделать вывод о том, что столь значительное изменение распределения атомов на поверхности при относительно небольших флюенсах облучения означает, что помимо прочих процессов при облучении происходит более интенсивное испарение атомов Ni по сравнению с испарением атомов Nb (см. ниже).

На рис.3 приведено изображение структуры поверхности образцов аморфного сплава $Ni_{58}Nb_{42}$, полученное с использованием сканирующей туннельной микроскопии высокого разрешения.

Видно, что происходит ступенчатое, а не плоскостное изменение объема. Кроме того, при примерно одинаковых площадях сканирования СТМ (230×230 нм и 300×300 нм) и примерно одинаковых перепадах высоты (34,54 и 44,92 нм) необлученные образцы имеют более развитую структуру по сравнению с облученными образцами.

При этом поверхность облученных образцов имеет ярко выраженную "чешуйчатую" структуру, что и обуславливает термин "ступенчатое увеличение объема" сплава $Ni_{58}Nb_{42}$ при облучении. Аналогичное изменение структуры поверхности было обнаружено и для аморфного сплава $Fe_{77}Ni_2Si_{14}B_7$.

Отметим, что по расчетам, по компьютерной программе SRIM-2000 проективный пробег ионов ^{86}Kr (245 МэВ) в сплаве $Ni_{58}Nb_{42}$ (плотность сплава $\rho=8,54$ г/см³, пороговая энергия смещения атомов $E_d=30...40$ эВ) составляет $R_p=13,4$ мкм. Средняя толщина исходных образцов X , равнялась ≈ 20 мкм.

Так как $R_p < X$, это приводит к изгибу образца при облучении, вызванном механическими напряжениями, возникающими в зоне остановки ионов криптона вблизи пика смещений – брэгговского пика.

Удельные ионизационные потери энергии ионов криптона составляют $(dE/dx)_{inel}=24$ МэВ/мкм, а сече-

$$T_i(\rho, t) = \alpha (dE/dx)_{inel} / (2\pi C_e C_i) \cdot \int_0^{\infty} \{ \exp(-\omega_1 t) - \exp(-\omega_2 t) \} \cdot \exp[-(k\rho_e)^2] \cdot J_0(k\rho) k dk / (\omega_2 - \omega_1). \quad (4)$$

Как утверждается в работе [13], ионы решетки не успевают образовать статистически равновесный ансамбль, поэтому введение параметров решетки и электронов, зависящих от температуры, не совсем точно. Параметры ω_1 и ω_2 , входящие в выражение (4), приведены в работе [12].

Наиболее простое выражение для оценки температуры имеет вид [14, 15]:

$$T_i = (dE/dx)_{inel} / (\pi R_c^2 C_i \rho), \quad (5)$$

ние дефектообразования – $\sigma_d=4 \times 10^{-17}$ сна·см²/ион. Следовательно, при флюенсе облучения $F_1 \cdot t=10^{15}$ ион/см² доза облучения на входе в мишень составляет $D_1=\sigma_d \cdot (F_1 \cdot t)=0,04$ сна, а при флюенсе $F_2 \cdot t=10^{14}$ ион/см² – $D_2=\sigma_d \cdot (F_2 \cdot t)=0,004$ сна. Как видно, указанные флюенсы облучения и дозы радиационных повреждений являются малыми, а вызванные ими явления (изменения структуры поверхности и распухание образцов) – значительными.

Имеющиеся теоретические представления (см., например, работы [10–17]) позволяют оценить температуру в треке тяжелого иона.

В работе [10] температура на оси трека иона в аморфном металле при облучении тяжелыми ионами рассчитывается по формуле:

$$T_i(0) = \{ 4 \cdot h \cdot S^2 \cdot N \cdot \sigma_0 \cdot \alpha \cdot r_0^2 \cdot T_0^{1/2} \{ (T_0/E_F)^{1,5} - 1 \} / (9 \cdot a \cdot \beta) \}^{1/2} + T_{нач}, \quad (1)$$

где S – скорость звука в аморфном металле; h – постоянная Планка; a – период решетки; N – атомная плотность для материала мишени; $\sigma_0=2 \cdot \pi \cdot a_0^2$ – сечение рассеяния электрона на атоме мишени; a_0 – боровский радиус; r_0 – начальный радиус области возбужденных электронов; T_0 – исходная электронная температура в возмущенной области; $b=0,1$ эВ⁻¹, $\alpha=0,05$ эВ⁻¹, $\beta=\alpha\gamma/(3\alpha+2b)$, $\gamma=0,033$ см²/(с·эВ^{3/2}) (для железа); E_F – энергия Ферми; $T_{нач}$ – температура облучения образца.

В работе [11] развивается модель теплового пика – теплового клина, основанная на более раннем подходе (см. работы [12, 13]). В этом случае для вычисления температуры в треке иона вводится система связанных уравнений вида:

$$C_e (dT_e/dt) = \nabla K_e \nabla T_e - \alpha (T_e - T_i) + A(\rho, t), \quad (2a)$$

$$C_i (dT_i/dt) = \nabla K_i \nabla T_i + \alpha (T_e - T_i). \quad (2б)$$

Параметры C_e и C_i – удельные теплоемкости электронного газа и решетки; K_e и K_i – теплопроводности электронного газа и решетки. Параметр a – константа электрон-фононного взаимодействия. В общем случае все эти константы зависят от температуры. В работах [12, 13] распределением электронной температуры вводится в теорию и имеет вид:

$$T_e^0(\rho) = 4(dE/dx)_{inel} / (\pi C_e \rho_0^2) \cdot \exp(-\rho^2 / \rho_0^2). \quad (3)$$

В случае, когда можно пренебречь зависимостью параметров C_e , C_i , K_e и K_i от температуры, решение системы уравнений (2) можно представить в виде

где R_c – радиус трека.

В работах [16, 17] температура в ионном треке в зависимости от времени приводится в следующей форме:

$$T_{tr}(r, t) = S_{inel} / (4 \cdot \pi \cdot K_i \cdot t) \cdot \exp[-C_V \cdot r^2 / (4 \cdot K_i \cdot t)] + T_{нач}. \quad (6)$$

Используя выражение (6) с параметрами $K_i=54$ Вт/(м·К) и $C_V=C_i \cdot \rho_i$, где $C_V \approx 368$ Дж/(кг·К) и $\rho_i=8540$ кг/м³, можно вычислить температуру в треке тяжелого иона в зависимости от расстояния от его

оси в различные моменты времени. Эти зависимости показаны на рис.4.

Видно, что температура на оси трека в период времени до 5×10^{-12} с превышает не только температуру плавления сплава, но и его температуру испарения.

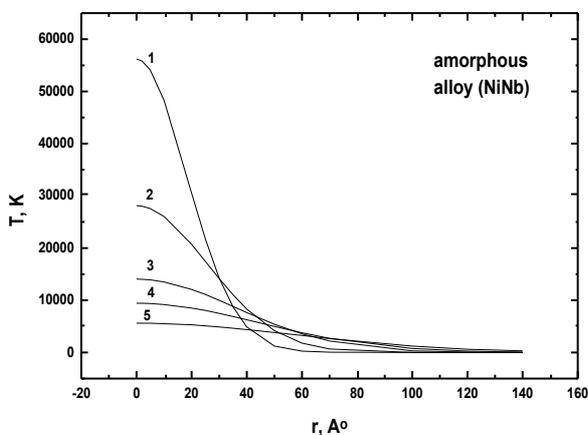


Рис.4. Зависимость температуры $T=T_r-T_{нач}$ от расстояния от оси трека r в различные моменты времени: 1 – $t_1=10^{-13}$ с; 2 – $t_2=2 \times 10^{-13}$ с; 3 – $t_3=4 \times 10^{-13}$ с; 4 – $t_4=6 \times 10^{-13}$ с; 5 – $t_5=10^{-12}$ с

Образцы, облученные ионами ^{209}Bi с энергией 705 МэВ до флюенсов 10^{12} и 10^{13} ион/см², были также изучены методом СТМ, но в связи с тем, что исходная структура поверхности не была достаточно гладкой, измерить диаметр кратеров на поверхности не удалось.

При флюенсе облучения 10^{13} ион/см² так же, как в случае облучения ионами ^{86}Kr , был обнаружен изгиб образца, обусловленный механическими напряжениями, возникающими в зоне остановки ионов.

ВЫВОДЫ

При изучении аморфного сплава $\text{Ni}_{58}\text{Nb}_{42}$, облученного ионами ^{86}Kr с энергией 245 МэВ до флюенсов 10^{13} , 10^{14} и 10^{15} ион/см² и ионами ^{209}Bi с энергией 705 МэВ до флюенсов 10^{12} и 10^{13} ион/см², получен ряд интересных результатов.

Исследования атомного сплава $\text{Ni}_{58}\text{Nb}_{42}$ при облучении ионами ^{86}Kr с энергией 245 МэВ позволили установить, что существенно изменяется структура его поверхности, а именно: характерный волнистый рельеф, возникший при изготовлении сплава, уменьшается и дробится, приобретая вид чешуйчатой структуры.

Кроме того, происходит набухание аморфного сплава, которое при флюенсе 10^{15} ион/см² достигает ~15%. При этом образовавшиеся при изготовлении сплава капли расплава сохраняют свое положение, а прилегающие к ним области набухают, смещаясь навстречу падающему ионному пучку. На основании обнаруженной "чешуйчатой" структуры облученной поверхности можно сделать вывод о том, что происходит ступенчатое, а не плоскостное увеличение объема.

Изучение элементного состава облученного аморфного сплава $\text{Ni}_{58}\text{Nb}_{42}$ при двух флюенсах облу-

чения 10^{14} и 10^{15} ион/см² показало, что элементный состав также изменяется, – на поверхности увеличивается концентрация атомов Nb и уменьшается концентрация атомов Ni. Эти изменения можно объяснить процессами распыления атомов с поверхности облучаемого сплава по механизму испарения.

Выполненные оценки и вычисления температур в треке тяжелых ионов ^{86}Kr по имеющимся в настоящее время аналитическим выражениям и численными методами показали, что температура на оси трека превышает температуры испарения и плавления аморфного сплава в течение времен, достаточных для испарения атомов с поверхности.

Тем не менее, не вполне понятны различия при сравнении полученных в данной работе данных по набуханию с более ранними результатами, представленными в работах [1-4]. Именно поэтому крайне целесообразно продолжение исследований, в особенности, при облучении ионами с более высокими ионизационными потерями энергии.

ЛИТЕРАТУРА

1. A. Gutzmann, S. Klaumünzer, P. Meier. Ion-beam-induced surface instability of glassy $\text{Fe}_{40}\text{Ni}_{40}\text{B}_{20}$ // *Phys. Rev. Lett.* 1995, v. 74, № 12, p. 2256–2259.
2. A. Gutzmann, S. Klaumünzer. Shape instability of amorphous materials during high-energy ion bombardment // *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B.* 1997, v. 127/128, p. 12–17.
3. H. Kuch, S. Klaumünzer. Magneto-optical study of flux-line pinning in semiconductors with linear defects // *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B.* 1998, v. 146, № 1-4, p. 565–571.
4. S. Klaumünzer. Radiation compaction of porous Vycor glass // *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B.* 2000, v. 166-167, p. 459–464.
5. M. Toulemonde, A. Meftah, J.M. Constantini, K. Schwartz, C. Trautmann. Out-of plan swelling of gadolinium gallium garnet induced by swift heavy ions // *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B.* 1998, v. 146, p. 426–430.
6. C. Trautmann, C. Dufour, E. Paumier, R. Spohr, M. Toulemonde. Track etching in amorphous metallic $\text{Fe}_{81}\text{B}_{13.5}\text{Si}_{3.5}\text{C}_2$ // *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B.* 1996, v. 107, p. 397–402.
7. A. Audouard, E. Balanzat, J.C. Jousset, D. Lesueur, L. Tomé. Atomic displacements and atomic motion induced by electron excitation in heavy-ion-irradiated amorphous metallic alloys // *J. Phys: Condens. Matter.* 1995, v. 5, № 5, p. 995–1018.
8. Ю.Ц. Оганесян, С.Н. Дмитриев, А.Ю. Дидык, Г.Г. Гульбекян, В.Б. Кутнер. Новые возможности ускорительного комплекса ЛЯР им. Г.Н. Флерова в производстве трековых мембран // *Радиационная физика твердого тела. Труды X Международного совещания*, г. Севастополь, 3-8 июля 2000 г., М., 2000, с. 42–50.
9. V.A. Skuratov, A. Illes, Z. Illes, K. Bodnar, A.Yu. Didyk, A.V. Arkhipov, K. Havancsák. Beam diagnostics and data acquisition system for ion beam transport line used in applied research // *JINR Communication* E13-99-161, Dubna, 1999, 8 p.

10. Yu. Yavlinskii. Track formation in amorphous metals under swift heavy ion bombardment // *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B*. 1998, v. 146, № 1-4, p. 142–146.
11. M. Toulemonde. Nanometric phase transformation of oxide materials under GeV energy heavy ion irradiation // *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B*. 1999, v. 156, № 1-4, p. 1–11.
12. Я.Е. Гегузин, М.И. Каганов, И.М. Лифшиц. Влияние длины свободного пробега электронов на образование трека вокруг траектории заряженной частицы в металле // *Физика твердого тела*. 1973, т. 15, № 8, с. 2425–2428.
13. И.М. Лифшиц, М.И. Каганов, Л.В. Танатаров. К теории радиационных изменений в металлах // *Атомная энергия*. 1959, т. 6, № 4, с. 391–402.
14. А.А. Давыдов, А.И. Калиниченко. Механические эффекты вблизи ионных треков и термических пиков // *Вопросы атомной науки и техники. Серия: «Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение»*. 1985, вып. 3(36), с. 27–30.
15. А.Ю. Дидик. Радиационное воздействие тяжелых ионов на хромоникелевую сталь при высоких температурах // *Известия РАН. Металлы*. 1995, № 3, с. 128–135.
16. M. Nastasi, J.W. Mayer. Ion beam mixing and liquid interdiffusion // *Radiat. Ef. and Defects in Solids*. 1994, v. 130-131, p. 367–85.
17. Д.В. Куликов, А.Л. Суворов, Р.А. Сурис, Ю.В. Трушин, В.С. Харламов. Физическая модель формирования периодической структуры на поверхности пиролитического графита при высокоэнергетическом ионном облучении // *Письма в ЖТФ*. 1993, т. 23, № 14, с. 89–3.

ВПЛИВ ОПРОМІНЕННЯ ВАЖКИМИ ІОНАМИ ВИСОКИХ ЕНЕРГІЙ НА СТРУКТУРНІ ЗМІНИ В АМОРФНИХ СПЛАВАХ

О.Ю. Дідик, Л.І. Іванов, В.К. Сьоміна, А.Л. Суворов, О.С. Федотов, Ю.М. Чеблуків, В.О. Алтинов

Представлені експериментальні дані по впливу опромінення важкими іонами в режимі високих іонізаційних втрат енергії на поверхні ряду аморфних сплавів. Показано, що всі изучені сплави випробують значне розпухання, наприклад, для сплаву $Ni_{58}Nb_{42}$ воно склало 15% після опромінення іонами ^{86}Kr з енергією 305 МэВ при флюєнсі 10^{15} ион/см². Використовано декілька вислівів для розрахунку температур на осі траєкторії іона. Продемонстровано, що розрахункові температури перевищують не тільки температуру плавлення, але й випаровування сплавів. На основі температурних розрахунків та виконаних вимірювань продемонстровано, що розпилення–випаровування атомів аморфних сплавів має місце.

RADIATION EFFECTS IN AMORPHOUS ALLOYS UNDER THE HIGH ENERGY HEAVY IONS IRRADIATION

A.J. Didik, L.I. Ivanov, V.K. Semina, A.L. Suvorov, A.S. Fedotov, J.N. Tchablukov, V.A. Altinov

The experimental results about influence of heavy ion irradiation effect with high inelastic energy loss on the surfaces of some amorphous alloys are presented. It was shown that all studied alloys swell very strongly up to about 15% for $Ni_{58}Nb_{42}$ under the irradiation with the ^{86}Kr ion (energy 305 MeV) at the fluence 10^{15} ion/cm². Besides that the sputtering-evaporation yield takes place too. A few expressions for the calculation of temperatures on the axis of ion trajectory were used. It was shown that calculated temperatures higher not only the melting temperature but also the evaporation temperature, too. On the basis of temperature calculations and experimental results one can conclude that the atom sputtering-evaporation from amorphous alloys takes place.