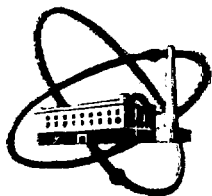


8118810464



ФЭИ-1863

ФИЗИКО-ЭНЕРГЕТИЧЕСКИЙ ИНСТИТУТ

С. И. ГОЛУБОВ, Ю. В. КОНОБЕЕВ, С. И. РУДНЕВ

## **Изучение кинетики низкотемпературного облучения никеля ионами никеля**

УДК 620.187.621.039.531

**С. И. Голубов, Ю. В. Конобеев, С. И. Руднев.**

Изучение кинетики низкотемпературного облучения никеля ионами никеля.

ФЭИ-1863. Обнинск: ФЭИ, 1987. — 12 с.

Экспериментально и теоретически исследована кинетика радиационных повреждений при низкотемпературном (50 и 300°С) облучении утоненных фольг ионами никеля с энергией 50 кэВ, предварительно облученных теми же ионами до дозы 20 сна при температуре 550°С. Сделана попытка теоретически описать наблюдаемый отжиг пор в предположении о неподвижности вакансий в процессе облучения. Обсуждаются экспериментальные возможности такого облучения для изучения механизмов взаимодействия собственных междоузельных атомов с различными стоками в металлах.



## Введение

Р основе радиационных повреждений металлов и сплавов лежат процессы генерации пар Френкеля (вакансий (ВАК) и собственных межузельных атомов (СМА)) и поглощения их различными дефектами кристаллической решетки - краевыми дислокациями, ВАК - порами, ВАК и СМА - дислокационными петлями, частицами выделений и т.д. Знание эффективностей поглощения точечных дефектов этими стоками - необходимое условие создания теории радиационных повреждений металлов. К настоящему времени теоретически рассмотрены различные механизмы взаимодействия точечных дефектов со стоками, определяющие скорости поглощения ими ВАК и СМА, которые, однако, не позволяют получить достаточно надежного описания эволюции микроструктуры облучаемых металлов. Это свидетельствует о том, что либо изученные модели не соответствуют действительности, либо решающую роль в кинетике радиационных повреждений играют другие дефекты кристаллической решетки, по-видимому, плохо различимые в ВЭМ (малые ВАК-петли, пузырьки газа, мелкие скопления примесных атомов и т.д.). Имеющийся экспериментальный материал не позволяет, к сожалению, однозначно определиться в этом вопросе. Это в значительной мере связано с тем, что в большинстве своем экспериментальные данные по влиянию облучения на металлы и сплавы получены для достаточно высоких температур облучения, когда и ВАК и СМА обладают высокой подвижностью. При этом, как известно, изменение микроструктуры облучаемых металлов является следствием "разностного" эффекта - одновременного поглощения ВАК и СМА стоками. В силу того, что разность потоков ВАК и СМА на поры, дислокации и т.д. примерно на два порядка меньше самих потоков, экспериментальная информация относительно абсолютных величин потоков ВАК и СМА сказывается в значительной мере неопределенной.

Более определенную информацию об эффективностях поглощения точечных дефектов различными стоками можно получить в том случае, если изменение микроструктуры материала происходит благодаря поглощению только одной компоненты пары Френкеля - либо ВАК, либо СМА. В силу относительной малости энергии образования ВАК, первый случай легко осуществить в закалочных экспериментах или в экспериментах по отжигу дефектов кристаллической решетки. Для изучения поглощения СМА такой путь не реален - слишком велика энергия образования СМА в металлах. Имеется, однако, другая возможность - облучение при относительно низких температурах. Действительно, энергия миграции СМА примерно на порядок ниже энергии миграции ВАК и, следовательно,

с понижением температуры облучения будет происходить "замораживание" ВАК. Радиационное изменение микроструктуры материалов при таком облучении можно охарактеризовать как "квазиоднокомпонентное", поскольку поглощаются стоками только СМА, но в условиях, когда в металле зарождаются и ВАК и СМА. При таком низкотемпературном облучении появляется возможность отвердиться в механизмах взаимодействия СМА с различными стоками, исследовать влияние на эти механизмы различных факторов - легирования, термо-механической обработки и т.д.

Цель настоящей работы - провести экспериментальное и теоретическое исследование кинетики радиационных повреждений никеля при низкотемпературном (50 и 300°C) облучении ионами  $Ni^+$  с энергией 50 кэВ, предварительно облученных теми же ионами до дозы 20 сна при температуре 550°C в предположении о неподвижности ВАК.

## I. Условия эксперимента и результаты измерений

Образцы технически чистого никеля (99,9 %) предварительно отожженные в вакууме ( $8 \cdot 10^{-5}$  Па) при 800°C в течении 1 ч и утоненные для просмотра в электронном микроскопе, облучались ионами  $Ni^+$  с энергией 50 кэВ при плотности тока  $2 \text{ мкА/см}^2$ . Методика проведения эксперимента (приготовление образцов и облучения) описана ранее [1]. Облучение проводилось в два этапа. На первом образцы облучались при 550°C дозой 20 сна, затем температура снижалась до 50 или 300°C и облучение продолжалось до доз 2,4, 10 и 20 сна. Средняя скорость объемной генерации точечных дефектов К, рассчитанная согласно [2], составляла  $5 \cdot 10^{-3}$  сна/с в течение всего периода облучения.

Электронно-микроскопическое исследование облученных образцов никеля, проведенное на электронном микроскопе ЭМВ-100ЛМ, показало наличие пор во всех образцах. Облучение образцов никеля при 550°C приводило к образованию в материале большого количества вакансионных пор и величина распухания составила 2,5 %. При скачкообразном

понижении температуры облучения до 50 или 300°C оказалось, что вакансионные поры, образовавшиеся в процессе предварительного облучения растворяются. Так например, при 50°C уже к дозе низкотемпературного облучения 4 сна исходная величина распухания 2,5 % уменьшилась более чем в два раза. В случае облучения при 300°C такое же уменьшение распухания наблюдается при дозе 10 сна. За дозу 20 сна конечное распухание уменьшается с 2,5 % до 0,04 % и до 0,16 % для температур 50 и 300°C соответственно. На рис. I показано поведение распухания в зависимости от дозы низкотемпературного облучения.

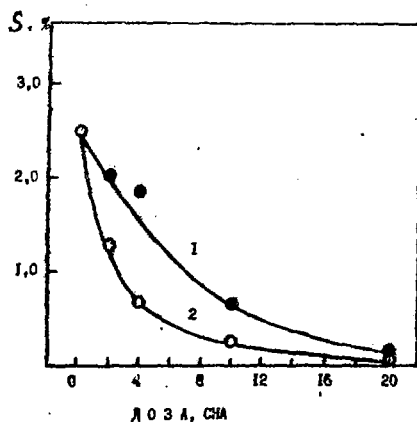


Рис. I. Дозная зависимость распухания никеля при скачкообразном понижении температуры с 550°C после дозы 20 сна. Кривая I отвечает режиму облучения 550/300°C, кривая 2 - 550/50°C.

Результаты эксперимента свидетельствуют о том, что при температурах, меньших нижней границы распухания, поток межузельных атомов в поры превышает поток ВАК. В результате этого происходит забивание пор СМА или радиационно-стимулированный отжиг пор. Ниже обсуждаются возможные причины радиационно-стимулированного отжига вакансионных пор во время облучения после заметного снижения температуры.

## 2. Оценка времени установления стационарных концентраций точечных дефектов

Если температура облучения внезапно понижается в момент времени  $t = 0$ , а облучение продолжается с прежней мощностью дозы, то концентрации точечных дефектов начинают изменяться во времени (наступает переходной режим). Наиболее медленная компонента — вакансии, поскольку подвижность последних во много раз меньше подвижности СМА при всех температурах. Известно, что по порядку величины время достижения стационарного значения концентрации ВАК меньше или равно  $1/D_v S_v$ , где  $D_v$  — коэффициент диффузии вакансий,  $S_v$  — суммарная интенсивность стока для ВАК в материале. Если  $S_v = 5 \cdot 10^{10} \text{ см}^{-2}$ ,  $D_v = 0,35 \exp(-1,3 \text{ эВ}/kT), \text{ см}^2/\text{с}$ , то при  $50^\circ\text{C}$  и  $300^\circ\text{C}$  время выхода концентрации вакансий на новые стационарные уровни составит  $1,1 \cdot 10^{10} \text{ с}$  и  $16 \text{ с}$  соответственно. Время, за которое набирается доза  $20 \text{ сна}$ , при  $K = 5 \cdot 10^{-3} \text{ сна/с}$  равно  $4000 \text{ с}$ . Следовательно при  $50^\circ\text{C}$  концентрация вакансий в облучаемом материале будет возрастать в течение всего времени облучения.

Из-за высокой подвижности СМА их концентрация достигает стационарного уровня за время порядка  $1/D_i S_i$  ( $S_i$  — суммарная интенсивность стока для СМА в материале). Оценивая коэффициент диффузии СМА в никеле по формуле  $D_i = 10^{-3} \exp(-0,15 \text{ эВ}/kT) \text{ см}^2/\text{с}$ , полагая  $S_i = 5 \cdot 10^{10} \text{ см}^{-2}$ , получим для времени выхода концентрации СМА на квазистационарный уровень при  $50^\circ\text{C}$  и  $300^\circ\text{C}$  значения  $4 \cdot 10^{-6} \text{ с}$  и  $4 \cdot 10^{-7} \text{ с}$  соответственно. Это ничтожно малые времена и размеры пор не могут существенно измениться.

## 3. Концентрации точечных дефектов

Скорость распухания  $\dot{S}$  выражается через концентрации  $C_v$  и  $C_i$  следующим образом:

$$\dot{S} = D [D_v C_v - D_i C_i]. \quad (1)$$

Здесь предполагается, что эффективности стока пор  $\gamma_v = \gamma_i = 1$ . Если  $S_0$  — начальное распухание, то решение уравнения (1) имеет вид:

$$S = S_0 + \int_0^t D(t') [D_v C_v(t') - D_i C_i(t')] dt'. \quad (2)$$

Концентрации  $C_v$  и  $C_i$  удовлетворяют уравнениям химической кине-

тики :

$$\begin{aligned} \dot{C}_v &= K_v - M_R D_i C_i C_v - D_v C_v S_v \\ \dot{C}_i &= K_i - M_R D_i C_i C_v - D_i C_i S_i \end{aligned} \quad (3)$$

где  $S_v$  и  $S_i$  - интенсивности стока для ВАК и СМА. В уравнении (3) учтено, что бомбардирующие ионы вносят вклад в скорость генерации междоузельных атомов и, следовательно,  $K_i > K_v$ . Отличие  $K_i$  от  $K_v$  невелико и зависит от спектра энергий ПВА. При облучении никеля собственными ионами с энергией 50 кэВ максимальная энергия ПВА, очевидно, равна  $T_m = 50$  кэВ (доловое столкновение), а средняя энергия  $\bar{T} = 25$  кэВ. Поэтому рождаемое число пар Френкеля без учета электронных потерь можно оценить числом  $0,8 \bar{T}/2 E_d$ , где  $E_d = 20$  эВ - пороговая энергия смещений. Следовательно, при такой грубой оценке на каждые 500 рождаемых вакансий генерируется 501 СМА и  $K_i - K_v = 2 \cdot 10^{-3} K$ .

Из п.2 следует, что во втором уравнении в (3) можно положить  $\dot{C}_i = 0$ . Поэтому имеем

$$D_i C_i = \frac{K_i}{M_R C_v + S_i} \quad (4)$$

Подставив (4) в первое уравнение системы (3), получим следующее уравнение для  $\dot{C}_v$  :

$$\dot{C}_v = K_v - \frac{M_R K_i C_v}{M_R C_v + S_i} - D_v C_v S_v \quad (5)$$

с начальным условием  $C_v(0) = 0$ . В уравнении (5) интенсивности стоков  $S_v$  и  $S_i$  сложно зависят от времени и поэтому его решение можно получить лишь численным способом.

Заметим, что если время переходного этапа изменения концентрации ВАК невелико (например, при  $300^\circ\text{C}$ ), то легко убедиться в том, что (доложив  $\dot{C}_v = 0$  в уравнении (5)), :

$$D_v C_v = \frac{K_v}{S_v} \Psi, \quad D_i C_i = \frac{K_i}{S_i} \Psi + \frac{K_i - K_v}{S_i}, \quad (6)$$

где

$$\Psi = \frac{2}{\left[ 1 + \frac{M_R (K_i - K_v)}{D_v S_v S_i} \right] + \sqrt{\left[ 1 + \frac{M_R (K_i - K_v)}{D_v S_v S_i} \right]^2 + \frac{4 K_v M_R}{D_v S_v S_i}}}$$

Из (6) следует, что скорость распухания, равная

$$\dot{s} = \frac{K_v D}{S_i} \left[ \frac{S_i - S_v}{S_v} \sqrt{\quad} - \frac{K_i - K_v}{K_v} \right] \quad (7)$$

может быть отрицательной, если выражение в квадратных скобках меньше нуля.

Разность  $S_i - S_v$  равна  $(Z_i - Z_v) L$ . В условиях сильной рекомбинации второе слагаемое под корнем в выражении для  $\sqrt{\quad}$  (см. (6)) много больше единицы. Учитывая эти обстоятельства, формулу (7) можно записать в следующем виде

$$\dot{s} = \frac{K_v D}{S_i} \left[ \frac{Z_i - Z_v}{Z_v} \sqrt{\frac{D_v (Z_v L)^2}{K_v M_R}} - \frac{K_i - K_v}{K_v} \right]. \quad (8)$$

Полагая в (8)  $L = 1,7 \cdot 10^{10} \text{ см}^{-2}$  (при  $550^\circ\text{C}$ )  $K_v = 5 \cdot 10^{-3} \text{ сна/с}$ ,  $M_R = 10^{17} \text{ см}^{-2}$ ,  $D_v = 0,35 \exp(-1,3 \text{ эВ}/K_B T)$ ,  $\text{см}^2/\text{с}$ ,  $(Z_i - Z_v)/Z_v = 5\%$ ,  $(K_i - K_v)/K_v = 2 \cdot 10^{-3}$ , получим, что квадратная скобка в (7) становится отрицательной для всех температур ниже  $475^\circ\text{C}$ . Отсюда ясно, что при резком снижении температуры облучения ионами никеля ( $E = 50 \text{ кэВ}$ ) с  $550^\circ\text{C}$  до температуры ниже  $475^\circ\text{C}$  поры в никеле будут отжигаться. Отжиг является радиационно-стимулированным, так как поры забиваются генерируемыми междоузельными атомами. Он происходит в силу того, что бомбардирующие собственные ионы дают вклад в скорость создания СМА так, что  $K_i > K_v$ . Однако такой отжиг сопровождается зарождением новых СМА-петель, в результате чего значение  $L$  возрастает. Поэтому при некоторой дозе отжиг должен прекратиться и распухание снова должно начать расти. Степень отжига зависит от температуры второго (низкотемпературного) этапа облучения и тем больше, чем ниже температура второго этапа. Ясно, что для очень низких температур, при которых за время повторного облучения концентрация вакансий не успевает достичь стационарного уровня, выражение (8) несправедливо. Для этих температур скорость радиационно-стимулированного отжига распухания больше, чем дает формула (8).

Если температура второго этапа облучения, столь низка, что первым слагаемым в квадратной скобке формулы (8) можно пренебречь, то полагая отношение  $D/S_i = 0,3 \therefore (K_i - K_v)/K_v = 2 \cdot 10^{-3}$ ,



получим следующую грубую оценку для производной распухания по дозе:

$$\frac{dS}{dKt} = -6 \cdot 10^{-2} \% / \text{сна} . \quad (9)$$

Из этой формулы следует, что за дозу 20 сна распухание должно уменьшиться на 1,2 %. Совпадение с наблюдаемым уменьшением распухания на 2,5 % при повторном облучении при 50°C можно получить, если  $(K_i - K_v) / K_v = 4 \cdot 10^{-3}$ . Последнее значение представляется вполне разумным, так как приведенная выше оценка разности  $K_i - K_v$  получена в предположении о том, что ион с энергией 50 кэВ рождает ПВА с средней энергией 25 кэВ. Реальный спектр энергий ПВА, может лежать левее этой энергии. Вполне реально, что на каждые 250 вакансий генерируется 251 СМА и, следовательно,  $K_i - K_v = 4 \cdot 10^{-3} K_v$  и даже больше.

Любопытно отметить, что при постоянстве температуры облучения формула (8) определяет "инкубационную" плотность стоков,  $L_{\text{инк}}$ , которая должна образоваться в материале, чтобы материал начал распухать

$$Z_v L_{\text{инк}} = \frac{\left( \frac{K_i - K_v}{K_v} \right)}{\left( \frac{Z_i - Z_v}{Z_v} \right)} \sqrt{\frac{K_v M_R}{D_v}}$$

Если положить  $K = 5 \cdot 10^{-3}$  сна/с,  $M_R = 8 \cdot 10^{16}$  см<sup>-2</sup>,  $D_v = 0,35 \exp(-1,3 \text{ эВ} / K_B T)$  см<sup>2</sup>/с и  $(K_i - K_v) / K_v = 4 \cdot 10^{-3}$ , то при увеличении температуры от 450°C до 650°C, величина

$\left( \frac{K_i - K_v}{K_v} \right) \sqrt{\frac{K_v M_R}{D_v}}$  уменьшается от  $4,6 \cdot 10^9$  см<sup>-2</sup> до  $0,52 \cdot 10^9$  см<sup>-2</sup>. Так как начальная плотность дислокаций в никеле составляла  $2 \cdot 10^9$  см<sup>-2</sup> и оказалась достаточной для образования пор, начиная с самых малых доз, то это свидетельствует о том, что фактор предпочтения в начальный момент облучения был не меньше 230 % при 450°C и 26 % при 650°C ( в предположении о том, что  $Z_v \approx 1$  ).

В следующем разделе обсуждается другая возможность объяснения радиационно-стимулированного отжига пор при внезапном понижении температуры облучения. Как будет показано ниже, эта возможность связана с учетом структуры каскадов смещений, в которых образуются вакансии и межузельные атомы.

#### 4. Учет структуры каскадов столкновений

Пробег ионов с энергией 50 кэВ в никеле составляет примерно  $\approx 20$  нм, что в 6-7 раз меньше толщины облучаемых образцов ( $\approx 120 - 150$  нм). Это означает, что генерация точечных дефектов происходит в сравнительно узком приповерхностном слое, из которого избежавшие рекомбинации ВАК и СМА мигрируют в остальную область металлической фольги.

Известно [3 - 5], что в каскадах смещений образование ВАК и СМА происходит пространственно неоднородно: основная доля ВАК сосредоточена в центральной области каскада, в то время как СМА - на его периферии. При этом характерный масштаб неоднородности составляет несколько постоянных решетки (длина цепочек замещающих столкновений плюс длина диффузии СМА в термопике (см. обсуждение вопроса в [4]). Принимая во внимание это обстоятельство, разумно предположить, что область генерации СМА при ионном облучении несколько больше по размеру по сравнению с ВАК. Действительно, каскады смещений образуются вдоль пробега иона и, следовательно, на границе области генерации СМА окажутся на более удаленном расстоянии от облучаемой поверхности образца. Это означает, что существует узкий слой, в котором СМА генерируется без ВАК и, следовательно, не рекомбинирует с ВАК. Как показывают дальнейшие оценки, предположение о существовании такого слоя достаточно для объяснения радиационного отжига ВАК-пор, наблюдавшегося в эксперименте.

#### 5. Скорость отжига пор

В первом приближении примем, что скорости генерации ВАК и СМА описываются выражениями вида:

$$K_{\alpha}(x) = \begin{cases} K_{\alpha 0}, & 0 \leq x \leq l_{\alpha} \\ 0, & x > l_{\alpha} \end{cases} \quad (10)$$

Причем для СМА область генерации  $l_i$  сдвинута на величину  $h$  ( $h$  - толщина слоя генерации СМА свободная от ВАК), то есть  $l_i = l_v + h$  ( $h \ll l_v$ ). В этом случае решение уравнений баланса (3) для ВАК и СМА, учитывая их нелинейность, можно получить лишь с

помощью численных методов. Однако хорошее приближенное решение этой задачи может быть получено, если ограничиться рассмотрением более простого случая. А именно, можно приближенно считать, что в области  $x < l_v$  концентрации СМА равна нулю, так как в силу высокой интенсивности процесса рекомбинации она действительно много меньше, чем в основной части фольги. В этом случае рассматриваемая задача эффективно сводится к описанию диффузионного расплывания СМА из тонкого слоя толщиной  $h \ll l_v$  залегающего на глубине  $l_v$ . Очевидно, что диффузия СМА из этого слоя будет примерно симметрична в области  $x < l_v$  и  $x > l_i$  и, следовательно, поток СМА в область, свободную от вакансий, составит величину  $\sim 0,5 K_0 i h$ . Распределение концентрации СМА по глубине пленки  $C_i(x)$  при  $x > l_v$  в этом случае имеет вид

$$C_i(x) = \frac{K_0 i h}{2\sqrt{S_i}} \cdot \frac{\text{sh} [\sqrt{S_i}(L-x)]}{\text{ch} [\sqrt{S_i}(L-l_v)]} \quad (II)$$

Средняя концентрация СМА в области  $x > l_v$ ,  $\langle C_i(x, t) \rangle$ , связана с  $C_i(x, t)$  простым соотношением  $\langle C_i(x, t) \rangle = (L-l_v)^{-1} \int_{l_v}^L C_i(x, t) dx$  и равна

$$\langle C_i(x, t) \rangle = \frac{K_0 i h}{2S_i(L-l_v)} [1 - \text{ch}^{-1} \sqrt{S_i}(L-l_v)] \quad (I2)$$

Подставляя (I2) в (I) с учетом неподвижности ВАК и интегрируя полученное уравнение имеем для временной зависимости распухания  $S(t)$  следующее выражение :

$$S(t) = S_0 - \frac{K_0 i h}{2(L-l_v)} \int_0^t \frac{D(\tau) [1 - \text{ch}^{-1} \sqrt{S_i}(L-l_v)]}{S_i} d\tau \quad (I3)$$

Интеграл в правой части (I3) легко вычислить численно, если использовать экспериментальные зависимости параметров вакансионных пор, СМА-петель и дислокаций от дозы облучения и приняв для величины  $S_i(t)$  выражение

$$S_i(t) = D(t) + Z_i [g_d(t) + \pi \langle d_l(t) \rangle N_l(t)], \quad (14)$$

где  $g_d(t)$  - плотность краевых дислокаций, а  $\langle d_l(t) \rangle$  и  $N_l(t)$  - средний диаметр и концентрация СМА-петель (эффективности поглощения СМА дислокациями и петлями  $Z_i$  в (14) приняты равными единице, так как в отсутствии подвижности вакансий зависимость  $S_i(t)$  от  $Z_i$  несущественна).

Проводя интегрирование в (13) при следующих параметрах:  $v = 20$  нм,  $L = 150$  нм,  $K_{oi} = 3 \cdot 10^{-2}$  сна/сек (в п.1 приведено усредненное по толщине фольги значение скорости генерации точечных дефектов  $K$  связанное с величиной  $K_{oi}$  соотношением  $K = K_{oi} (v/L)$ ) и  $t = 4 \cdot 10^3$  сек (максимальная доза облучения) и, приравнявая  $S(t)$  значениям 0,04 и 0,16 для температур облучения  $50^\circ\text{C}$  и  $300^\circ\text{C}$  для параметра  $h$  получим значения 1,27 нм и 0,56 нм соответственно. Эти значения близки к оценкам масштаба неоднородности каскадной области [4], что свидетельствует в пользу развитой модели. Уменьшение величины  $h$  с ростом температуры облучения также представляется разумным, ибо пространственное разделение областей генерации вакансий и СМА зависит от длины цепочек атом-атомных столкновений в каскадах, длина которых (см. [4]) уменьшается с ростом температуры кристалла. Таким образом, предложенная выше модель позволяет не только объяснить быстрый отжиг пор при низкотемпературном облучении, но качественно объясняет температурную зависимость этого процесса.

## 6. Обсуждение результатов

Использованное выше предположение о пространственном разделении областей генерации вакансий и СМА при ионном облучении не имеет в настоящее время прямого экспериментального подтверждения. Однако, можно предложить эксперимент, в котором такое разделение может быть обнаружено явно. Действительно, если область независимой от вакансий генерации СМА существует, то при низкотемпературном облучении толстых фольг с хорошо развитой ВАК-пористостью ионами достаточно высоких энергий должно наблюдаться существенно неоднородное разделение пор по размерам вдоль пробега иона. В области интенсивной генерации ВАК и СМА размер пор будет оста-

ваться близким к первоначальному ( по крайней мере для доз облучения порядка нескольких десятков сна). За областью интенсивной генерации точечных дефектов размеры вакансионных пор должны оказаться существенно меньшими. Ширина этой области зависит от длины "свободного пробега" СМА, определяющейся интенсивностью внутренних стоков (напомним, что рекомбинация СМА и ВАК в этой области отсутствует) и составит величину порядка  $l/\sqrt{S_1}$ . Методика электронно-микроскопических исследований вдоль пробега ионов достаточно развита в нашей стране и за рубежом. Поэтому принципиальных трудностей для экспериментальной проверки предложенной выше модели не должно существовать.

В рамках предложенного выше объяснения кинетика радиационных повреждений в условиях эксперимента, подобного нашему определяется структурой каскада смещений. Существенным при этом является то обстоятельство, что при низкотемпературном облучении ионами в области, лежащей за зоной генерации точечных дефектов и свободной от вакансий, возникает достаточно высокая концентрация СМА. Это позволяет рассматривать низкотемпературное ионное облучение как один из способов изучения свойств СМА в металлах и сплавах. Действительно, из-за подвижности и большой энергии образования СМА прямых методов экспериментального изучения таких характеристик СМА как коэффициент диффузии, энергия связи с различными примесями, взаимодействия с различными дефектами кристаллической решетки и др. не существует. Извлечение этих данных из экспериментов по облучению при повышенных температурах (когда ВАК подвижны) осложнено процессами с участием ВАК. В экспериментах по низкотемпературному ионному облучению эти трудности отсутствуют, ибо в области металла, лежащей за зоной генерации ВАК и СМА, все радиационно-стимулированные процессы идут с участием только СМА, причем концентрация последних достаточно велика.

### Выводы

1. Обнаружено, что повторное облучение при температурах, меньших нижней температурной границы вакансионной пористости приводит к уменьшению распухания в результате радиационного отжига ранее образовавшихся пор.
2. Показано, что полученные результаты можно объяснить как вкладом бомбардирующих ионов в скорость генерации СМА так и незначи-

тельным сдвигом профиля генерации СМА относительно профиля генерации ВАК по глубине образца при облучении ионами с малым проективным пробегом. Указанный сдвиг может быть следствием пространственного разделения СМА и ВАК в каскадах смещений.

3. Изучение радиационно-стимулированного отжига пор при облучении тонких фольг металлов собственными ионами с энергией в несколько десятков кэВ при низких температурах дает информацию о свойствах СМА и об интенсивностях стоков точечных дефектов.

#### Литература

1. Кротов В.И., Лебедев С.Я., Панин С.Д. Исследование радиационной пористости на ускорителе ИЛУ-100. - Препринт ФЭИ-652, Обнинск, 1976, 28 с.
2. Delaplace J., Azam H., Le Naour L. Gonflement du nickel irradié par des ions Ni de moyenne énergie. - J. Nucl. Mater., 1973, v.47, N3, p.278-294.
3. King W.E., Benedek R. Molecular dynamics simulation of low energy displacement in Cu. - J. Nucl., 1983, v.117, p.26-31.
4. Капинос В.Г., Кеворкян Ю.Р. О роли цепочек замещающих столкновений в формировании структуры каскадных областей. - ВАНТ Сер.: ФП и ФН, 1983, в 2 (25), с. 3-10.
5. Benedek R. Spatial characteristics of displacement cascade in metals. - J. Appl. Phys., 1981, v.52, p.5557-5565.

Технический редактор **Н. П. Герасимова**

---

Подписано к печати 31.07.1987 г.	Т-16591	Бумага писчая № 1	
Формат 60×90 <sup>1</sup> / <sub>16</sub>	Усл. п. л. 0,8	Уч.-изд. л. 0,5	Тираж 85 экз.
Цена 8 коп.	Индекс 3624	ФЭИ-1863	

---

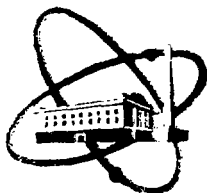
Отпечатано на ротапринтере ФЭИ.  
249020, г. Обнинск, Калужской обл.

**Изучение кинетики низкотемпературного облучения никеля  
ионами никеля.  
ФЭИ-1863. 1987, 1-12.**



418806-17

ФЭИ-1865



ФИЗИКО-ЭНЕРГЕТИЧЕСКИЙ ИНСТИТУТ

В. Н. КОНОНОВ, В. С. МАСТЕРОВ, Н. С. РАБОТНОВ

**О сверхупругом рассеянии  
заряженных частиц на ядерных изомерах**

УДК 539.173

**В. Н. Конозов, В. С. Мастеров, Н. С. Работнов.**

О сверхупругом рассеянии заряженных частиц на ядерных изомерах.  
ФЭИ-1865. Обнинск: ФЭИ, 1987. — 8 с.

Рассматривается процесс, обратный кулоновскому возбуждению ядеррассеяние заряженных частиц на долгоживущих возбужденных состояниях, сопровождающийся передачей энергии возбуждения налетающей частице. Показано, что сечение этого процесса может составлять десятки мкб. Его можно использовать как альтернативу резонансному вынужденному гамма-излучению для проверки свойств изомеров с трехуровневой схемой по отношению к разрядке, вынуждаемой внешним электромагнитным полем.



## 1. Введение

Проблема индуцированной внешним полем разрядки метастабильных возбужденных состояний ядер давно вызывает понятный интерес. В связи с надеждами на создание в перспективе гамма-лазеров обычно обсуждается вероятность вынужденного гамма-излучения под действием гамма-кванта той же энергии. Основные связанные с этим вопросы изложены, например, в обзоре [1].

Помимо создания нужной заселенности изомерных состояний главной трудностью на этом пути является смещение вследствие отдачи чрезвычайно узких линий, отвечающих таким процессам, катастрофически ухудшающее условия резонанса.

В работе [2] была рассмотрена трехуровневая схема, когда между основным и изомерным состояниями находится быстрораспадающийся уровень, на который и разряжается изомер. Полная наблюдаемая ширина гамма-линии, соответствующей разрядке изомера, складывается из естественных ширин начального и конечного состояний перехода. Поскольку вторая на много (до 14-15) порядков больше, то она практически совпадает с полной шириной. Оптимистические выводы работы [2] основаны на предположении, что именно эта большая наблюдаемая ширина входит множителем в вероятность индуцированного излучения вместо естественной ширины изомерной линии. Несмотря на отсутствие четкой мотивировки этого предположения, были приняты усилия для его экспериментальной проверки, и в работах [3, 4] обнаружены слабые эффекты. Авторы [3] считают их указанием на справедливость этого предположения. Авторы работы [4] ограничиваются более осторожным утверждением, что качественно их результаты можно интерпретировать как наблюдение вынужденного излучения  $^{125m}\text{Te}(\gamma, 2\gamma)$ , но с количественными оценками они расходятся.

В настоящей работе обрабатывается внимание на то, что вынужденную разрядку изомера можно осуществить не полем электромагнитной волны, а кулоновским полем налетающей быстрой заряженной частицы. Энергия изомера может при этом выделяться двумя способами: излучением гамма-кванта или ускорением налетающей частицы. Второй процесс можно было бы назвать внешней конверсией по аналогии с известным процессом внутренней конверсии, когда энергия ядерного возбуждения безызлучательным способом передается атомному электрону. Взаимодействие электронов с возбужденными атомами, сопро-

возрастающее передачей энергии налетающей частице, в последнее время привлекает внимание в физике электрон-атомных столкновений, где это явление получило название сверхупругого рассеяния (см. [5]). Этим термином мы и будем пользоваться для названия аналогичного ядерного процесса. Он является точно обратным кулоновскому возбуждению изомера, а в случае трехуровневой схемы - второму этапу каждого кулоновского возбуждения. Поэтому при расчете его вероятности можно прямо пользоваться формулами соответствующей прекрасно разработанной теории [6]. С ростом мультипольности  $\lambda$  вероятность кулоновского возбуждения при прочих равных условиях падает гораздо медленнее, чем вероятность электромагнитного возбуждения - примерно как  $(R/a)^{2\lambda+1}$  вместо  $(kR)^{2\lambda+1}$  (здесь  $R$  - радиус ядра,  $a$  - расстояние наибольшего сближения частицы с ядром,  $k$  - волновой вектор гамма-кванта). В типичных условиях  $R/a$  примерно на два порядка больше, чем  $kR$ , и при больших мультипольностях, характерных для изомерных переходов, выигрыш может достигать многих порядков. Поэтому как инструмент проверки основного предположения работы [2] сверхупругое рассеяние представляется гораздо более удобным. Необходимые количественные оценки и приводятся ниже.

## 2. Основные соотношения теории кулоновского возбуждения.

Введем следующие обозначения:

$Z_1 e$  - заряд ядра-мишени;

$Z_2 e$  - заряд налетающей частицы;

$m_1$  и  $m_2$  - их массы;

$v$  - скорость налетающей частицы;

$E = m_1 v^2 / 2$  - ее энергия (ограничимся рассмотрением нерелятивистского случая);

$a = Z_1 Z_2 e^2 / m_1 v^2$  - половина расстояния наибольшего сближения;

$\Delta E = |E_f - E_i|$  - разница энергий конечного и начального состояний ядра-мишени;

$\xi = Z_1 Z_2 e^2 \Delta E / \hbar v E$  - основной безразмерный параметр теории кулоновского возбуждения.

Тогда выражения для дифференциальных сечений кулоновского возбуждения переходов мультипольностей  $E\lambda$  и  $M\lambda$  и равных им сечений сверхупругого рассеяния имеют вид (см. [6])

$$d\sigma_{E\lambda} = \left( \frac{Z_1 e^2}{\hbar v} \right)^2 a^{-2\lambda+2} B(E\lambda) d\Omega_{E\lambda}(\theta, \xi) \quad (1)$$

$$dG_{M\lambda} = \left(\frac{z_1 e}{\hbar c}\right)^2 a^{-2\lambda+2} B(M\lambda) df_{M\lambda}(\theta, \xi) \quad (2)$$

Здесь  $B(E\lambda)$  и  $B(M\lambda)$  - приведенные вероятности соответствующих электромагнитных переходов,

$$df_{E\lambda}(\theta, \xi) = \frac{4\pi^2}{(2\lambda+1)^3} \sum_{\mu} |Y_{\lambda\mu}(\frac{\pi}{2}, 0)|^2 |I_{\lambda\mu}(\theta, \xi)|^2 \sin^{-4} \frac{\theta}{2} d\Omega \quad (3)$$

$$df_{M\lambda}(\theta, \xi) = \frac{4\pi^2}{(2\lambda+1)^2} \sum_{\mu} \frac{(\lambda+1)^2 - \mu^2}{\lambda^2(2\lambda+3)} |Y_{\lambda\mu, m}(\frac{\pi}{2}, 0)|^2 |I_{\lambda\mu, m}(\theta, \xi)|^2 \frac{d\theta^2 \theta/2}{\sin^4 \theta/2} d\Omega \quad (4)$$

В выражениях (3-4)  $Y_{\lambda\mu}(\theta, \varphi)$  - сферические гармоники, их частные значения равны

$$|Y_{\lambda\mu}(\frac{\pi}{2}, 0)|^2 = \begin{cases} \left[ \frac{(2\lambda+1)}{4\pi} \frac{(\lambda-\mu)! (\lambda+\mu)!}{[(\lambda-\mu)! (\lambda+\mu)!]} \right]^2 & \text{при } (\lambda+\mu) \\ & \text{четном} \\ 0 & \text{при } (\lambda+\mu) \\ & \text{нечетном} \end{cases} \quad (5)$$

а кулоновские интегралы  $I_{\lambda\mu}(\theta, \xi)$  имеют следующий вид

$$I_{\lambda\mu}(\theta, \xi) = \int_{-\infty}^{\infty} e^{\xi(\epsilon shw + w)} \frac{[shw + \epsilon + i\sqrt{\epsilon^2 - 1}]^{\lambda}}{[\epsilon shw + 1]^{\lambda+\mu}} dw \quad (6)$$

$$\epsilon = (\sin \theta/2)^{-1}$$

Полные сечения получаются интегрированием выражений (3-4) по углу  $\theta$  с учетом (6). Обозначим

$$\int_0^{\pi} \frac{df_{E\lambda, M\lambda}(\theta, \xi)}{d\Omega} d\Omega \equiv f_{E\lambda, M\lambda}(\xi) \quad (7)$$

Чтобы связать сечения (1-2) с шириной исследуемого изомерного уровня  $\Gamma_{\lambda}^{\mu}$ , используем известное выражение для вероятности излучения в единицу времени через приведенную вероятность радиационного перехода (см., например, [7])

$$P(E, M\lambda) \equiv \frac{\Gamma_{\lambda}^{\mu}}{\hbar} = \frac{8\pi}{\hbar} \frac{\lambda+1}{\lambda [(2\lambda+1)!]^2} k^{2\lambda+1} B(E, M\lambda) \quad (8)$$

Выражая отсюда  $B(E, M\lambda)$  через  $\Gamma_\gamma$ , подставляя в (1-2) и интегрируя по углу, получаем

$$G_{E\lambda} = Z_1^2 a^2 \frac{\Gamma_\gamma}{\Gamma_0} (ak)^{-(2\lambda+1)} C_\lambda f_{E\lambda}(\xi) \quad (9)$$

$$G_{M\lambda} = \left(\frac{R^2}{c^2}\right) Z_1^2 a^2 \frac{\Gamma_\gamma}{\Gamma_0} (ak)^{-(2\lambda+1)} C_\lambda f_{M\lambda}(\xi) \quad (10)$$

где  $C_\lambda = \lambda [(2\lambda+1)!!]^2 / 8\pi(\lambda+1)$ , а характерная энергетическая постоянная

$$\Gamma_0 = \frac{E^2(M \gg B)}{Z_1 Z_2} 8 \cdot 10^7 \gg B \quad (11)$$

Для удобства выразим через безразмерные величины и остальные множители, входящие в (9 - 10)

$$a = \frac{Z_1 Z_2}{E(M \gg B)} 7,20 \cdot 10^{-14} \text{ см} \quad (12)$$

$$ka = \frac{Z_1 Z_2 \Delta E}{E} 3,64 \cdot 10^{-13}$$

### 3. Вычисление кулоновских интегралов

Кулоновские интегралы нескольких низших порядков детально исследованы в [6] 8. Важнейшим их свойством является экспоненциальное уменьшение с ростом  $\xi$ . При  $\xi \gg 1$  справедлива оценка

$$I_{\lambda\mu}(\theta, \xi) = e^{-\pi\xi} \quad (13)$$

В пределе  $\xi \rightarrow 0$  выражение (6) упрощается, позволяя получить  $I_{\lambda\mu}(\theta, \xi)$  после аналитического интегрирования в виде отношения полиномов от угла  $\theta/2$  и его тригонометрических функций. Экспериментальные исследования тоже облегчаются при  $\xi \gg 0$ , т.е. при малых отношениях  $\Delta E/E$ , поскольку сечения в этом случае максимальны. Поэтому мы будем рассматривать лишь случай  $\xi = 0$ .

Измеренные переходы соответствуют высоким мультипольностям. Для рассматриваемого нами процесса наиболее подходящие случаи от-

вещают переходам М4. Для оценки их сечений, согласно (3-4), необходимы интегралы  $I_{5\mu}(\theta, 0)$ , которые и получены ниже. Затем будет выполнено численное интегрирование по углу для вычисления полного сечения.

Заменой переменных (см. [5]) выражение (6) при  $\xi = 0$  сводится к

$$I_{\lambda\mu}(\theta, 0) = (\epsilon^2 - 1)^{-\lambda + 1/2} \int_{\varphi}^{\varphi_0} e^{i\mu\varphi} (\epsilon \cos\varphi - 1)^{\lambda-1} d\varphi \quad (14)$$

где  $\varphi_0 = \pi/2 - \theta/2 = \text{arctg}(\epsilon^2 - 1)^{1/2}$ . Прямое интегрирование при  $\lambda = 5$  дает

$$I_{5\pm 5} = \frac{16}{315} \sin^5 \theta/2 \quad (15)$$

$$I_{5\pm 3} = \frac{\sin^5 \theta/2}{105 \cos^3 \theta/2} \left[ 48 + 87 \sin^2 \frac{\theta}{2} - 38 \sin^4 \frac{\theta}{2} + 8 \sin^6 \frac{\theta}{2} - 105 \frac{\theta}{2} \left( \frac{\pi - \theta}{2} \right) \right] \quad (15')$$

$$I_{5\pm 1} = \frac{\sin^5 \theta/2}{105 \cos^3 \theta/2} \left[ 16 + 83 \sin^2 \frac{\theta}{2} + 6 \sin^4 \frac{\theta}{2} - 15 \left( 3 + 4 \sin^2 \frac{\theta}{2} \right) \frac{\theta}{2} \left( \frac{\pi - \theta}{2} \right) \right] \quad (15)$$

Аналитическое интегрирование по углу выражений, получаемых при подстановке (15) в (3-4), возможно, но весьма громоздко. Поэтому интегрирование было выполнено численно. При этом имеется своя трудность: в пределе  $\theta \rightarrow \pi$  числитель и знаменатель подынтегральной функции имеют нули высокого порядка (до шестнадцатого, сводимого заменой переменных к восьмому). Поэтому для надежного выражения подынтегральной функции нужно специально преобразовывать соответствующее подынтегральное выражение с целью уменьшения потери знаков. В результате численного интегрирования и суммирования по  $\mu$  получаются следующие значения функций  $f$ :

$$f_{M4} = 2.317 \times 10^{-4}; \quad f_{E5} = 2.865 \times 10^{-4}.$$

#### 4. Численные оценки

В экспериментах [3,4] исследовался изотоп  $^{125m}\text{Te}$ , образующийся при поглощении нейтронов ядром  $^{124}\text{Te}$ . Он имеет энергию воз-

буждения  $E_2^* = 144,8$  КэВ,  $J^\pi = 11/2^-$  и период полураспада  $\tau = 58$  дней. Он распадается, испуская квант с энергией  $= 110$  КэВ мультипольности М4 и переходя в состояние  $E_1^* = 35,6$  КэВ,  $J^\pi = 3/2^+$  с  $\tau' = 1,48$  нс. Таким образом оцениваемый авторами [2,3] выигрыш интенсивности вынужденного излучения от замены ширины  $\Gamma_\gamma = \hbar/\tau$  на  $\Gamma'_\gamma = \hbar/\tau'$  составляет  $\sim 3 \times 10^{15}$ . Этот же фактор появляется при такой замене и в выражениях (9-10). Однако в случае индуцированного гамма-излучения даже такое усиление приводит к эффектам, труднообнаружимым и находящимся на грани чувствительности довольно сложных методик [3,4]. В сверхупругом рассеянии, сечение которого для того же изомера описывается выражением (9), введение этого фактора приводит к нереально большим значениям сечений, как показывают результаты расчетов, приведенные в таблице I. Наряду с  $^{125}\text{Te}$  там содержатся данные для переходов того же типа в  $^{119}\text{Sn}$  и  $^{121}\text{Te}$ . Оценки производились для сверхупругого рассеяния альфа-частиц с энергией  $E = 5$  МэВ.

Таблица I.

Сечения сверхупругого рассеяния альфа-частиц с энергией  $E = 5$  МэВ на изомерах с трехуровневой схемой  $11/2^- \rightarrow 3/2^+ \rightarrow 1/2^+$ .

Ядро	$\Delta E,$ КэВ	$\tau, \text{с}$	$\tau', \text{с}$	$\sigma, \text{см}^2$	$\sigma', \text{см}^2$
$^{125}\text{Te}_{52}$	110	$5,01 \times 10^6$	$1,48 \times 10^{-9}$	$1,48 \times 10^{-32}$	$5,0 \times 10^{-17}$
$^{125}\text{Te}_{52}$	81,8	$2,2 \times 10^7$	$6 \times 10^{-11}$	$4,9 \times 10^{-32}$	$1,8 \times 10^{-14}$
$^{119}\text{Sn}_{50}$	41,8	$2,16 \times 10^7$	$1,8 \times 10^{-8}$	$2,4 \times 10^{-29}$	$2,9 \times 10^{-14}$

$\sigma$  - значение сечения при подстановке в (9)  $\Gamma_\gamma = \hbar/\tau$ ,  $\sigma'$  - то же при подстановке  $\Gamma'_\gamma = \hbar/\tau'$ .

Из данных табл. I следует, что сечение сверхупругого рассеяния, например, на  $^{119m}\text{Sn}$  и без гипотетического усиления в трехуровневой схеме составляет вполне измеримую величину порядка 20 мкб. Поэтому наличие и порядок величины усиления гораздо удобнее было бы проверить в экспериментах по сверхупругому рассеянию, а не по



резонансному вынужденному гамма-излучению, поскольку в случае рассеяния не требуется никаких усилий по обеспечению условий мессбауэровского резонанса. Если же фактор усиления близок к величинам  $\tau/\tau^1$ , то кулоновскую разрядку изомеров можно было бы осуществить просто поднося к соответствующему образцу достаточно сильный альфа источник и регистрируя аномально быстрое уменьшение активности изомера. Однако, повторяем, существование таких факторов представляется совершенно неправдоподобным.

Разумеется, быстропеременное кулоновское поле налетающей частицы должно индуцировать и гамма-излучение изомеров. Расчет сечения такого процесса представляет интерес и его планируется провести в ближайшее время. Имеет смысл также оценить эффективность использования в качестве налетающих частиц быстрых электронов. В этом случае также должны происходить и сверхупругое рассеяние, и вынужденное гамма-излучение.

#### ЛИТЕРАТУРА

1. Baldwin G.C., Solem J.O., Goldanski V.I. Approaches to the development of gamma-ray lasers. Rev. Mod. Phys., 1981, v. 53, n4, p. 687.
2. Kamenov P., Bonchev T. Compt. Rend. 18 Acad. Bulg. des Sci., 1975, v. 28, p. 1175.
3. Скоробогатов Г.А., Дзевидский Б.Э. Парциальные радиационные ширины линий излучения ядер и новые возможности в  $\gamma$ -резонансе. Изв. АН СССР, сер. физ., 1984, т. 48, №10, с. 1934-1939.
4. Алпатов В.Г., Бизина Г.А., Давыдов А.В. и др. Наблюдение реакции ( $\gamma$ ,  $2\gamma$ ) на ядрах долгоживущего изомера  $^{125m}\text{Te}$ . Изв. АН СССР, сер. физ., 1984, т. 50, №10, с. 2013.
5. Tan K.L., von Engel A. Energy transfer from excited mercury atoms to electron. Proc. Roy. Soc., 1971, v. A324, p. 183.
6. Альдер К., Бор О., Хус Т., Моттельсон Б., Винтер О. Изучение структуры ядра при кулоновском возбуждении ионами. В кн. "Деформация атомных ядер", ИИЛ, Москва, 1958.
7. Давыдов А.С. Теория атомного ядра. ГИФМЛ, Москва, 1958, с. 383.

Технический редактор Н.П.Герасимова

---

Подписано к печати 31.07.1987 Т-16586 Бумага писчая № 1  
Формат 60x90 1/16 Усл.п.л. 0,5 Уч.-изд.л. 0,4 Тираж 85 экз.  
Цена 6 коп. Индекс 3624 ФЭИ-1865 1135

---

Отпечатано на роталпринте ФЭИ.  
249020 г. Обнинск Калужской обл.

**6 коп.**

**Индекс 3624**

**О сверхупругом рассеянии заряженных частиц на ядерных  
изомерах.  
ФЭИ-1865. 1987, 1-8.**