

Влияние облучения на размер зерна и текстуру в пленках Mo и Ta

В.А. Андрианов¹, К.А. Бедельбекова²¹ НИИЯФ МГУ (andrva22@mail)² Институт Ядерной Физики, Алматы, 050032 Казахстан

Введение

Физика радиационных повреждений важна при эксплуатации существующих ядерных реакторов и при создании новых ядерных и термоядерных устройств. Материалы, находящиеся в активных зонах, должны быть устойчивы к воздействию интенсивных потоков не только нейтронов, но также протонов и α -частиц. Основным материалом, который планируется использовать в передней стенке термоядерного реактора, — это вольфрам. Другими тугоплавкими материалами, которые могут быть также использованы в различных ядерных устройствах, являются металлические Mo и Ta и сплавы на их основе. Оба металла имеют кристаллические ОЦК-решетки, обладают коррозионностойкими свойствами и характеризуются высокими температурами плавления — 2620 и 2996 °C соответственно.

Плотность ионного тока поддерживалась в интервале 50–100 нА/см². Флюенс ионного потока для всех образцов составил 5×10^{16} ион/см². Образцы закреплялись на медном держателе с водяным охлаждением. Температура образцов в процессе облучения не превышала 60 °C.

Профиль концентрации имплантированных атомов Fe и количество первичных дефектов (вакансий и выбитых атомов матрицы) рассчитывали с помощью программы SRIM-2013 [2, 3]. Каждый ион ⁵⁷Fe создавал примерно 7000 выбитых атомов и столько же вакансий. Концентрация первичных дефектов в зависимости от глубины показана на рис. 1b. Максимум достигается на глубине 200–250 нм и составляла для Mo и для Ta примерно 120 СНА (Смещений На один Атом матрицы). Столь большие величины означают предельно сильное воздействие облучения на вещество.

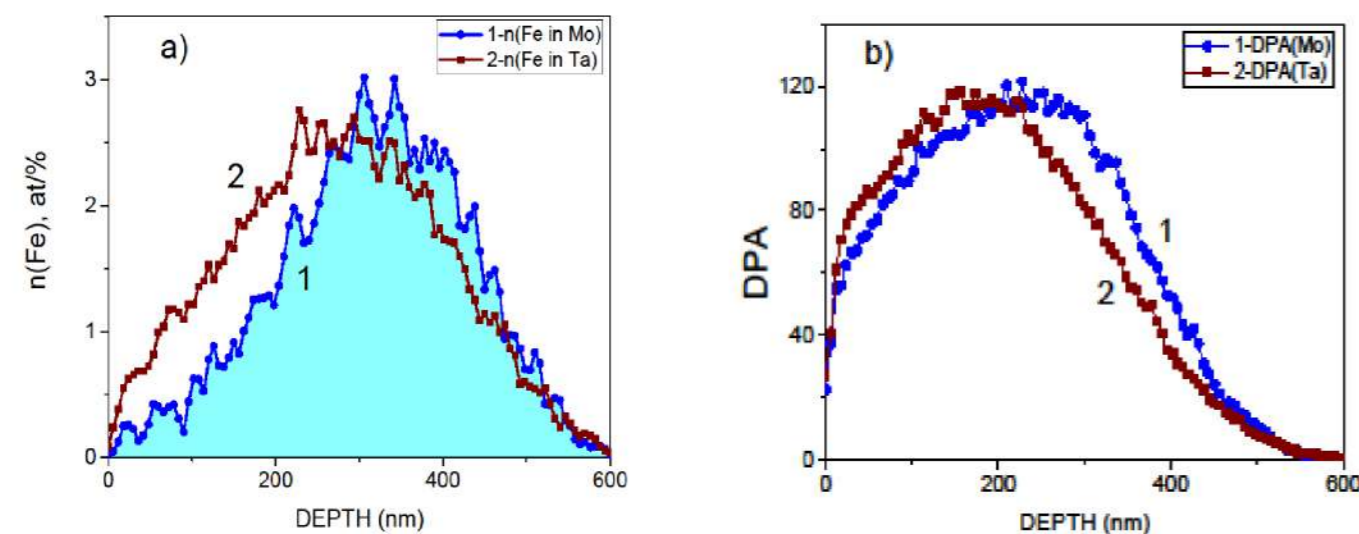


Рис. 1. а) Концентрация имплантированных атомов ⁵⁷Fe в матрицы Mo and Ta (кривые 1 и 2). б) СНА параметр как функция глубины для Mo and Ta (кривые 1 и 2). Расчеты выполнены программой SRIM-2013; энергия смещения для атомов Mo равна $E_d(\text{Mo}) = 60$ eV для атомов Ta $E_d(\text{Ta}) = 90$ eV.

Результаты и обсуждения

Дифрактограммы, полученные на фольгах Mo и Ta с облученной и обратной сторон, показаны на Рис. 2. Оба образца имеют структуру объемно-центрированной кубической решетки, с пространственной группой Im-3m. Дифрактограммы соответствуют структурным карточкам базы данных ICSD. Рентгенограммы содержат 3 основные линии, соответствующие рефлексам: 110, 200 и 211. Из Рис. 2 видно, что фольги Mo и Ta сильно текстурированы.

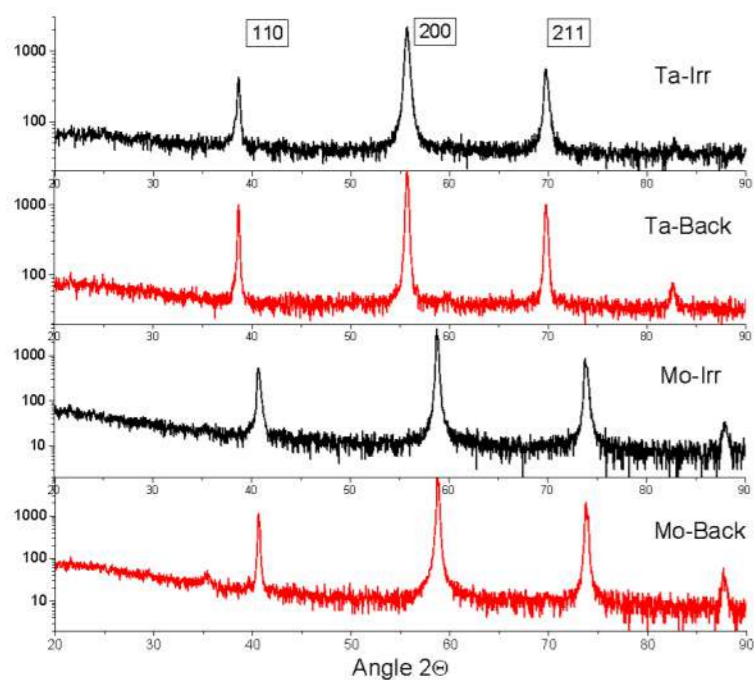


Рис. 2. Дифрактограммы фольг Mo и Ta, имплантированных ионами ⁵⁷Fe. Измерения с облученной (Irr) и обратной сторон (Back)

Степень текстуры образцов определялась из относительной интенсивности рентгеновских линий. На Рис. 3 приведены интенсивности основных дифракционных линий 110, 200, 211 и 220 для различных измерений фольг Mo и Ta. Резкое усиление интенсивности рефлекса 200 означает, что фольги Mo и Ta сильно текстурированы, с ориентацией кристаллографических плоскостей {100} в плоскости фольги. Это означает, что рекристаллизационный отжиг при температурах 800–900 °C оказался недостаточным для ликвидации текстуры механической прокатки. Важно отметить, что облучение ионами Fe также не оказало заметного влияния на текстуру, как облученной, так и тыльной сторон

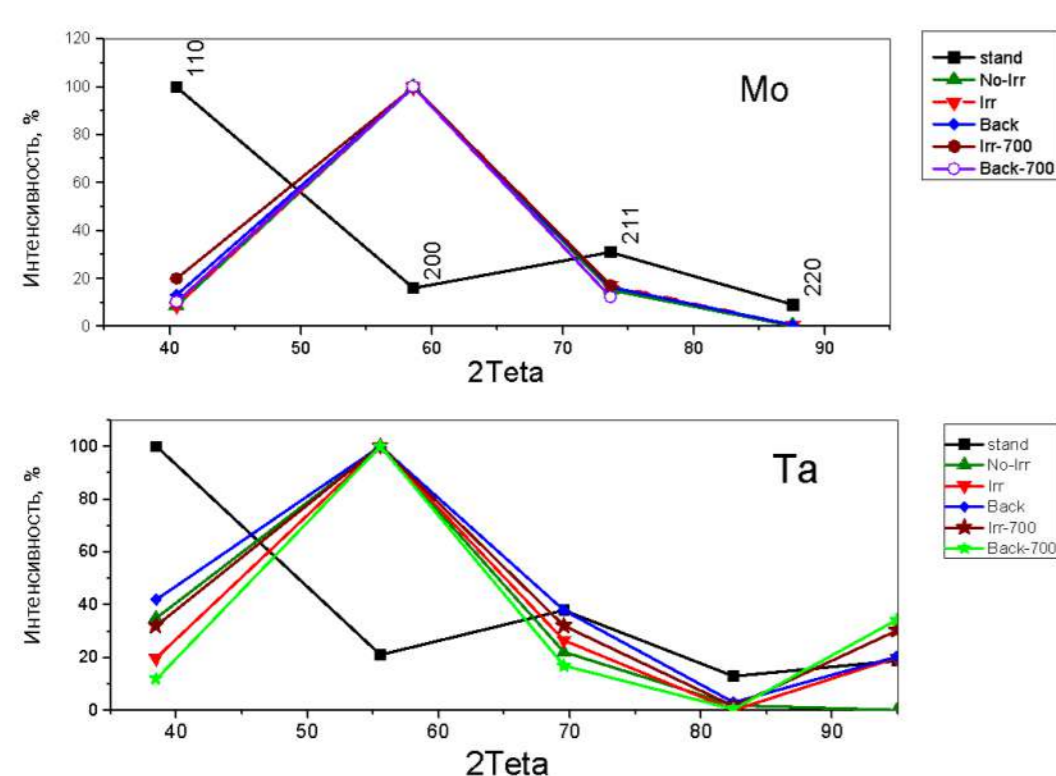


Рис. 3 Интенсивность рентгеновских рефлексов 110, 100, 211и 220 в текстурированных фольгах Mo и Ta. Stand – литературные данные, изотропный образец; No-Irr – исходный необлученный образец; Irr – облученная сторона фольги; Back – тыльная необлученная сторона фольги; Irr-700 и Back-700 – облученная и тыльная стороны после отжига 700 °C.

В настоящей работе радиационные повреждения в фольгах Mo и Ta создавались при имплантации ионов ⁵⁷Fe на ионном ускорителе. Этот метод является традиционным и позволяет создавать высокие дозы облучения, порядка десятков СНА (смещений на один атом матрицы), за относительно короткие времена. Заметим, что концентрация радиационных дефектов значительно превосходит концентрацию имплантированных атомов. Ранее на облученных образцах были проведены исследования методом Мессбауэровской спектроскопии на ядрах ⁵⁷Fe [1, 2] и методом EXAFS на Ka-линии Fe [3, 4]. Оба метода позволили получить данные о локализации атомов Fe в условиях высокодозного облучения.

В настоящей работе представлены рентгено-дифракционные исследования этих образцов, которые дают информацию о кристаллической решетке в целом. Измерения проводились как со стороны облученной поверхности фольг, так и с обратной необлученной стороны. Анализировались параметры кристаллической решетки, уширение линий и их интенсивность с точки зрения текстуры.

Эксперимент

Исследуемые образцы представляли собой металлические фольги Ta и Mo толщиной 20 мкм с размерами 10×10 мм. Фольги получались путем многократной холодной прокатки исходных массивных образцов. Рекристаллизационный отжиг проводился в вакууме 5×10^{-6} мм рт. ст. в течение 2-х часов при температурах 800–900 °C. Чистота исходных Mo и Ta была не хуже 99.9%.

Радиационные дефекты создавались в результате имплантации ионов ⁵⁷Fe. Облучение ионами ⁵⁷Fe с энергией 1 МэВ проводилось при комнатной температуре на ускорителе тяжелых ионов в Институте ядерной физики (г. Алматы,

Кристаллическая локализация атомов ⁵⁷Fe была исследована методами Мессбауэровской спектроскопии и EXAFS [2, 5]. В матрице Mo атомы Fe занимают преимущественно позиции замещения, а в матрице Ta – позиции внедрения и замещения. В обеих матрицах вблизи атомов Fe локализуются кристаллические вакансии. Концентрация вакансий оценена в 20 ат.%. Это значение существенно меньше рассчитанного значения СНА = 120, и свидетельствует о том, что уже в процессе облучения идет рекомбинация первичных радиационных дефектов. Тем не менее, концентрация вакансий 20 ат.% свидетельствует о значительных нарушениях кристаллической решетки в поверхностном слое.

После облучения фольги Mo и Ta были разделены пополам, и вторые половины образцов были отожжены в вакууме при температуре 700 °C в течение 2 ч. Известно [5], что при этой температуре заметную подвижность имеют межузельные атомы и вакансии, однако подвижность собственно атомов Mo, Ta и Fe мала, и рекристаллизация структуры не происходит. В [5] отмечалось, что при этой температуре ожидается выход внедренных атомов на границы зерен и сегрегация вакансий в кластеры и полости.

Особенностью исследованных образцов являлась неоднородность по толщине: общая толщина фольг равна 20 мкм, глубина имплантированного слоя – около 0.6 мкм. Рентгенограммы снимались, как с облученных сторон, так и с обратных сторон фольг. Предполагалось, что обратная сторона не подвергалась действию облучения. Таким образом, было измерено 8 дифрактограмм, которые имели следующие обозначения: Mo-Irr, Mo-Back, Mo-Irr-700 и Mo-Back-700, и Ta-Irr, Ta-Back, Ta-Irr-700, Ta-Back-700, где буквами Irr обозначалась облученная сторона и буквой Back – тыльная сторона фольг, и цифры 700 соответствовали отожженным образцам.

Таблица 1. Данные рентгеноструктурного анализа фольг Mo и Ta, имплантированных ионами ⁵⁷Fe. Обозначения: иsx – фольга до облучения, Irr – облученная сторона фольги; Back – обратная сторона фольги.

Образец	Параметр решетки a, Å	Размер кристаллитов (Scherrer), нм	Деформация решетки, %	Текстура, Полносная плотность, Φ_{100}
JCPDS-ICDD 42-1120 Mo	3.14700			1
Mo-исx	3.147(1)	96		5.2
Mo-Irr	3.147(1)	59		5.1
Mo-Back	3.148(1)	31		5.1
Mo-Irr-700	3.1472(3)	208	0.23	4.9
Mo-Back-700	3.1485(3)	246	0.17	5.5
JCPDS-ICDD 04-0788 Ta	3.3050			1
Ta-исx	3.303(1)	62		4.3
Ta-Irr	3.304(1)	28		4.2
Ta-Back	3.303(1)	54		3.5
Ta-Irr-700	3.307(1)	67	0.11	3.8
Ta-Back-700	3.305(1)	175	0.13	4.9

Анализ данных для образцов Mo и Ta после отжига при температуре 700 °C показал, что наблюдается небольшое ослабление текстуры, но только с облученной стороны фольги. При этом отжиг не влиял на текстуру необлученной стороны. Таким образом, отжиг при сравнительно небольшой температуре ($0.34E_{планк}$) ослабляет текстуру в облученном слое Mo. Рассчитанная полносная плотность Φ_{100} [11] приведена в Таблице 1.

Заключение

Проведены рентгено-дифракционные исследования фольг Mo и Ta, имплантированных ионами ⁵⁷Fe. Проведено сравнение данных для необлученных и облученных образцов, а также данных, полученных с облученной и необлученной сторон фольг. Показано, что облучение ведет уменьшению размеров кристаллических зерен в случае Ta.

Рентгеновские данные свидетельствуют, что фольги Mo и Ta сильно текстурированы с ориентацией кристаллографических плоскостей {100} в плоскости фольги. Облучение ионами Fe не оказывает заметного влияния на текстуру. Однако последующий отжиг при температуре 700 °C ($0.34T_{планк}$) ослабляет текстуру с облученной стороны для фольг Mo и Ta, при этом не оказывая влияния на текстуру необлученной стороны.

Авторы благодарны Центру коллективного пользования Кафедры Физики Твердого Тела Физфака МГУ за исследования отожженных фольг Mo и Ta.