

# СТМ-АНАЛИЗЫ ПОВЕРХНОСТНОЙ СТРУКТУРЫ ГРАФИТА, ПОДВЕРГНУТОГО ИМПУЛЬСНОМУ ОБЛУЧЕНИЮ ОСКОЛКАМИ ДЕЛЕНИЯ

*М.А.Козодаев<sup>1</sup>, О.Н.Макеев<sup>1</sup>, В.Ф.Хохряков<sup>2</sup>, Л.А.Осадчук<sup>2</sup>, Б.Г. Леваков<sup>2</sup>, В.П.Бабаев<sup>1</sup>,  
А.Л.Суворов<sup>1</sup>, А. Г. Залужный<sup>3</sup>*

<sup>1</sup>*ГНЦ РФ Институт теоретической и экспериментальной физики, Москва, Россия;*

<sup>2</sup>*РФЯЦ Всероссийский научно-исследовательский институт технической физики,  
Снежинск, Россия;*

<sup>3</sup>*Московский инженерно-физический технический университет,  
Москва, Россия*

Разработана методика облучения конструкционных материалов осколками деления в растворных импульсных ядерных реакторах. С помощью метода сканирующей туннельной микроскопии проведены исследования структуры поверхности высокоориентированного пиролитического графита (ВОПГ), подвергнутого импульсному облучению осколками деления. Флюенсы облучения варьировались в пределах от  $5 \cdot 10^{10}$  до  $5 \cdot 10^{12}$  осколков/см<sup>2</sup>. Определен спектр поверхностных дефектов, шероховатость формируемой поверхности облучения.

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Исследования влияния нейтронного облучения на материалы, связанные с разработкой и созданием современных ядерно-физических установок (реакторов на быстрых нейтронах, термоядерных реакторов), требуют разработки новых, более экономичных методов моделирования воздействия на материалы высоких потоков нейтронов ( $10^{22} \dots 10^{24}$  нейтр./см<sup>2</sup>), так как непосредственное облучение материалов в реакторе такими флюенсами очень длительный и дорогой процесс. В настоящее время имитация воздействия таких потоков осуществляется, как правило, облучением заряженными частицами с использованием различных типов ускорителей.

В настоящей работе развита и реализована достаточно простая и относительно недорогая методика облучения конструкционных материалов осколками деления. Данный метод имеет как ряд недостатков (облучение приповерхностных слоев и др.), так и существенные достоинства; основным из них является возможность быстрого набора больших значений количества смещений на атом (СНА). Несомненно, что исследование влияния облучения осколками деления на состояние поверхности и свойства материалов само по себе представляет большой научный интерес.

Сообщаются результаты проводимых авторами исследований влияния облучения осколками деления ядер на структуру поверхности углеродных материалов методом сканирующей туннельной микроскопии. Философия и методика таких исследований подробно изложены в [1-3]. Некоторые предварительные результаты были опубликованы авторами в [4].

## 2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

**2.1 Облучение образцов.** Для облучения образцов был разработан и создан на базе растворного импульсного реактора РФЯЦ ВНИИТФ

ИГРИК [5] источник осколков деления. Его принципиальная схема приведена на рис. 1. Конвертор нейтронов в осколки деления (КНОД) является устройством, в котором на тепловых нейтронах идет деление ядер  $U^{235}$ , в результате чего на каждый акт деления образуются, как правило, два осколка с энергией 99,8 и 68,4 МэВ, массой 96,08 и 139,92 а.е.м. и наиболее вероятным зарядом  $Z_p=40$  и  $Z_p=56$  для легкого и тяжелого осколков соответственно. КНОД должен обладать высокой механической, термической, радиационной стойкостью, особенно в импульсном режиме работы. Различные способы изготовления КНОД описаны в [6]. Материалом активного слоя служила окись урана  $U_3O_8$ , обогащенная по урану  $^{235}U$  на 90 %. В процессе облучения образцов измерялись флюенсы осколков, количество ядер распыленного урана, температура мишени и образцов. Для измерения флюенса осколков и количества ядер распыленного урана устанавливали алюминиевую фольгу, а сами измерения проводили методом гамма-спектроскопии. Температура мишени и образцов измерялась при помощи хромель-копелевой термопары.

В импульсном режиме облучения при энерговыделении в активной зоне реактора 57 МДж и длительности импульса 2,4 мс, флюенс осколков на поверхности образца достигал  $\sim 10^{12}$  осколков/см<sup>2</sup>, тогда как интенсивность потока осколков составляла  $\sim 4 \cdot 10^{14}$  осколков/(см<sup>2</sup> · с). Температура поверхности КНОД во время облучения  $\geq 250^\circ C$ .

Эксперименты, проведенные ранее на реакторе ИГРИК [4], выявили ряд недостатков первой конструкции источника: слои из  $U_3O_8$  обладали существенной разнотолщинностью, что не обеспечивало равномерного облучения образца;

сами слои  $U_3O_8$  были рыхлыми и не отвечали требованию по воспроизводимости выхода осколков

от импульса к импульсу;

слои не были устойчивы к импульсному облучению;

источник имел большой выход атомов урана на поверхность облучаемого объекта.

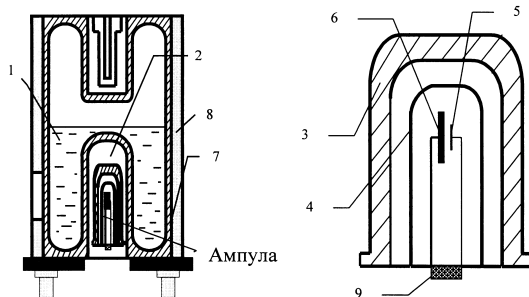


Рис.1. Принципиальная схема источника осколков деления ИОД-1.

1 - активная зона; 2 - экспериментальный канал; 3 - конвертор быстрых нейтронов в тепловые; 4 - экспериментальная ампула; 5 - исследуемый образец; 6 - конвертор нейтронов в осколки деления; 7 - корпус реактора; 8 - биологическая защита; 9 - электрический разъем для вывода сигналов датчиков сопровождения

С целью устранения выявленных недостатков была разработана новая конструкция КНОД, позволяющая проводить облучение образцов в диапазоне температур от  $-180$  до  $100$  °С (охлаждение осуществляется парами жидкого азота). Устройство снабжено вентильным узлом для его вакуумирования или заполнения при необходимости той или иной газовой атмосферой. В усовершенствованном КНОД слой делящегося вещества (толщина слоя  $3,4$  мкм, масса  $\sim 20$  мг) снаружи защищен тонким слоем алюминия ( $0,5$  мкм), что на два порядка снижает выход атомов урана на облучаемую поверхность образца.

## 2.2 Исследование поверхности образцов с помощью сканирующей туннельной микроскопии.

Эталонный и облученные образцы исследовались с помощью работающего на воздухе сканирующего туннельного микроскопа оригинальной конструкции. Каждый образец был исследован в 25 точках. Необходимо отметить, что в связи с радиационной активностью образцов исследование было осложнено. Активность образцов составляла  $\sim 850$  мкР/ч на расстоянии в  $1$  см от поверхности образца. Этим объяснялись и особые режимы сканирования, которые выбирались для минимизации влияния радиации на иглу сканера.

## 3. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

В результате анализа полученных изображений поверхности графита был сделан вывод о том, что облучение образцов осколками деления до флюенса  $5 \cdot 10^{11}$  осколков/см<sup>2</sup> и выше не позволяет наблюдать результаты единичных воздействий осколков на поверхность образца из-за их перекрытия. Это

следует также из проведенных оценок: указанные флюенсы соответствуют попаданию в среднем одного осколка деления на площадь  $\sim 15 \times 15$  нм и менее. Наблюдаемый результат воздействия на поверхность графита осколков деления при флюенсе  $5 \cdot 10^{12}$  осколков/см<sup>2</sup> - относительно равномерная «изрытость» рельефа с отдельными участками, на которых видны единичные «бугры» (рис.2,3).

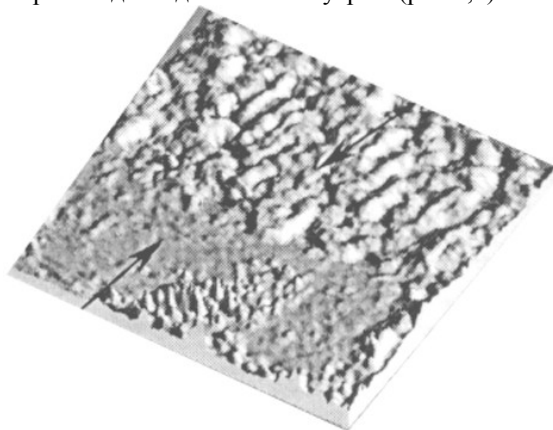


Рис.2. Типичное STM-изображение поверхности ВОПГ, облученной осколками деления с флюенсом  $5 \cdot 10^{12}$  осколков/см<sup>2</sup>. Стрелкой 1 указана область, подвергнутая существенной деградации, стрелкой 2 - область, на которую осколки деления не попали (демонстрация неравномерности облучения). Размер скана  $0,59 \times 0,57$  мкм, размах высот  $40$  нм

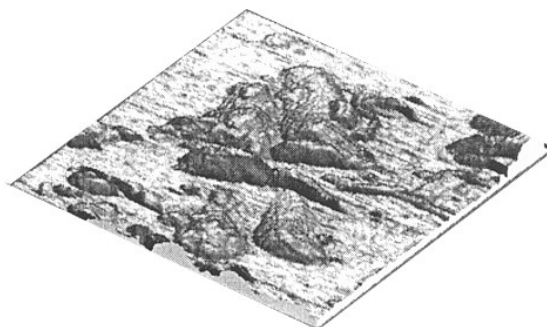


Рис.3. STM-изображение поверхности ВОПГ, облученной осколками деления с флюенсом  $5 \cdot 10^{12}$  осколков/см<sup>2</sup>. Образование отдельных «бугров» связано, по-видимому, с перекрытием дефектных областей от попадания нескольких осколков деления. Размер скана  $2,5 \times 2,5$  мкм, размах высот  $332$  нм

Как уже указывалось выше, для каждого образца было получено несколько десятков изображений. Для количественной оценки степени шероховатости (развитости) поверхности по каждому изображению были рассчитаны фрактальные размерности [7]. Ранее [8] авторами настоящей работы были проведены подобные STM-исследования влияния ионного облучения (облучение протонами разных энергий и под разными углами, а также облучение ионами лазерной плазмы) на рельеф поверхности ВОПГ.

Таблица

Тип образца	$D_1$	$D_2$
Эталонный образец (без облучения)	$1,0003 \pm 0,0001$	$2,0003 \pm 0,0001$
Образец, облученный протонами с энергией 3,0 МэВ нормально к поверхности	$1,0013 \pm 0,0001$	$2,0012 \pm 0,0001$
Образец, облученный протонами с энергией 90,0 кэВ под углом $45^\circ$ к поверхности	$1,0038 \pm 0,0010$	$1,0023 \pm 0,0009$
Образец, облученный протонами с энергией 90,0 кэВ нормально к поверхности	$1,0265 \pm 0,0149$	$2,0176 \pm 0,0009$
ОБРАЗЕЦ, ОБЛУЧЕННЫЙ ИОНАМИ ЦЕЗИЯ С ЭНЕРГИЕЙ 25 КЭВ	$1,0071 \pm 0,0019$	$2,0059 \pm 0,0017$
Образец, облученный лазерной плазмой SiO <sub>2</sub>	$1,0079 \pm 0,0010$	$2,0072 \pm 0,0009$
ОБРАЗЕЦ, ОБЛУЧЕННЫЙ ОСКОЛКАМИ ДЕЛЕНИЯ	$1,0054 \pm 0,0012$	$2,0058 \pm 0,0014$

Результаты воздействия различного типа облучения на рельеф поверхности путем сопоставления величин фрактальных размерностей представлены в таблице (где  $D_1$  - фрактальная размерность, рассчитанная по профилю,  $D_2$  - фрактальная размерность, рассчитанная по поверхности). Данные показывают, что значения величин фрактальной размерности лежат в широких интервалах даже для одного образца. Большой разброс можно объяснить тем, что сканы снимались на разных участках поверхности образца, захватывая различные структурные ячейки (зерна) с возможной различной ориентацией, а также возможной неравномерностью облучения. Графически результаты таблицы наглядно иллюстрирует рис.4.

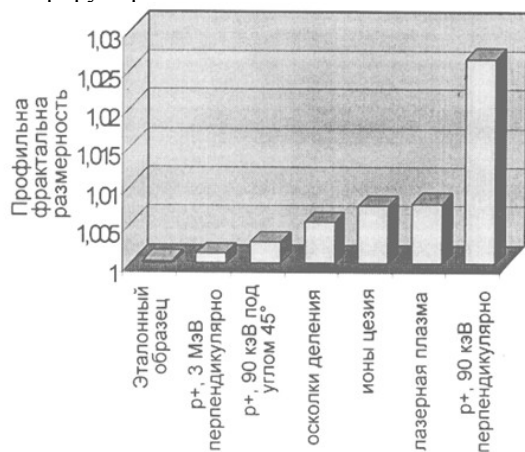


Рис.4. Графическая иллюстрация степени развитости поверхности образцов ВОПГ, подвергнутых различным радиационным воздействиям

В дальнейшем с целью устранения возможного перекрытия воздействия отдельных осколков деления с поверхностью исследуемого материала проводили облучение более низкими флюенсами осколков деления -  $5 \cdot 10^{10}$  осколков/см<sup>2</sup>. На рис. 5 представлено СТМ-изображение поверхности облученного монокристалла графита (кристаллографическая ориентация облучаемой поверхности ВОПГ - [0001]). На поверхности облученных материалов было отмечено появление «бугров».

Плотность бугров составила  $2,5 \cdot 10^8$  см<sup>-2</sup>, что на порядок меньше флюенса осколков деления. Диаметр бугров около 400 нм, высота около 10 нм. Отмечается наличие некоторого порядка в их распределении.

Известно, что по мере прохождения через вещество, энергия и заряд осколков деления непрерывно уменьшаются и, начиная с энергии около 1 МэВ, потеря энергии происходит путем упругих и неупругих столкновений с атомами решетки. При этом возникает так называемый пик смещения, когда в объеме с малым размером (сфера радиусом порядка 10 нм) на каждый атом выделяется энергия, превышающая энергию смещения. Средний пробег осколков деления зависит от тормозящего вещества и для двуокиси урана составляет 6 и 9 мкм, а для алюминия 9 и 13 мкм (для тяжелого и легкого осколков соответственно). В результате этого процесса в приповерхностных областях образуется большое число радиационных дефектов, а также происходит их радиационное легирование продуктами ядерных реакций, в том числе и инертными газами.

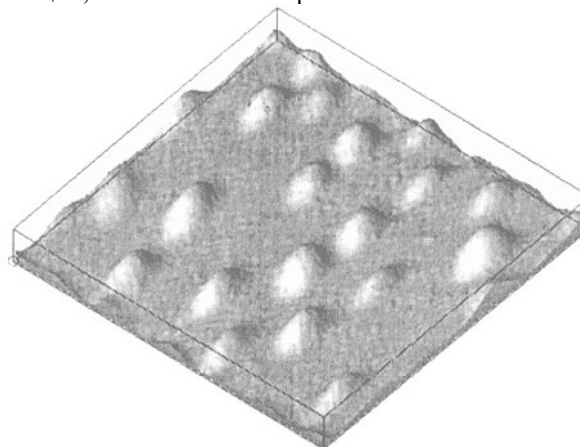


Рис.5. СТМ - изображение поверхности ВОПГ, облученного осколками деления с флюенсом  $5 \cdot 10^{10}$  осколков/см<sup>2</sup>. Плотность бугров составила  $2,5 \cdot 10^8$  см<sup>-2</sup>. Размер скана  $3 \times 3$  мкм, размах высот 27 нм

Можно предположить достаточно большое количество механизмов, которые в той или иной мере могут привести к образованию бугров на

поверхности исследуемого материала, облученного осколками деления. Это и возможное образование аморфной фазы, и образование междоузельных комплексов в приповерхностных слоях образца, и накопление в приповерхностном слое облученного материала газообразных продуктов ядерных реакций (гелий, ксенон, криптон). Возможно также это результат распыления поверхности и пересадения распыленного материала или осаждение делящегося материала и др. Есть факты подтверждающие возможность реализации одного из механизмов, но одновременно имеются факты и опровергающие это. Например, известно множество работ, говорящих о возможной аморфизации кристаллической фазы при облучении. Но в тоже время образование дополнительных бугров на поверхности облученного осколками деления кремния после его высокотемпературной выдержки опровергает этот механизм. По этим причинам в настоящий момент авторы не могут однозначно объяснить наблюдаемую эволюцию поверхности исследуемых материалов при их облучении осколками деления. Несомненно, полученные результаты представляют определенный научный интерес и требуют дополнительного тщательного изучения.

#### ЛИТЕРАТУРА

1. S.N.Magonov, M.-H.Whangbo. Surface Analysis with STM and AFM. Experimental and Theoretical Aspects of Image Analysis. West Sussex, WILEY-VCH, 1995.
2. А.Л. Суворов. Автоионная микроскопия радиационных дефектов в металлах. Москва: "Энергоиздат", 1982.
3. А.Л. Суворов, Ю.Н. Чеблуков, Н.Е. Лазарев, А.Ф. Бобков, М.О. Попов, В.П. Бабаев. Исследование поверхностных и объемных дефектов в углероде и кремнии методами автоионной и сканирующей туннельной микроскопии. //Журнал технической физики. 2000, т. 70, вып. 3, с. 56.
4. М.А. Козодаев, О.Н. Макеев, В.Ф. Хохряков, Л.А. Осадчук, Б.Г. Леваков, А.Г. Залужный, В.П. Бабаев, А.Л. Суворов. Анализ с помощью сканирующего туннельного микроскопа поверхностной структуры графита, подвергнутому импульсному облучению осколками деления. //Письма в ЖТФ, 2000, т. 26, вып. 10, с. 1.
5. В.С. Дьянков, В.П. Королев, А.И. Кормилитцин и др. Обзор ARSRITP экспериментальных устройств для радиационных исследований. //Физика металлов и металловедение. 1996, т. 81, ч. 2, с. 245.
6. В.Т. Казазян, Б.А. Литвиненко, Л.П. Рогинетс, И.А. Савушкин. Физические основы использования кинетической энергии осколков деления в радиационной химии. Минск: "Наука и техника", 1972.
7. S. Talibuddin, J.P. Runt. Reliability test of popular fractal techniques applied to small two-dimensional self-affine data sets. //J.Appl.Phys. 1994, v.76, N 9, p.5070.
1. Козодаев, Б.А. Логинов, А.Л. Суворов, А.М. Козодаев. Радиационная модификация поверхности пиролитического графита: анализ с помощью сканирующей туннельной микроскопии. //Современные проблемы ядерной физики, физики и химии конденсированных сред (Труды Первой Московской Международной школы физики ИТЭФ/ (под ред. Ю.Г.Абова, А.Л.Суворова, В.Г.Фирсова). М.: Редакция журнала «Успехи Физических Наук», 1999, с. 241