Радиационно-индуцированная пластическая деформация и "эффект дальнодействия"

© В.А. Степанов, В.С. Хмелевская

Обнинский институт атомной энергетики, филиал Национального исследовательского ядерного университета «МИФИ», 249040 Обнинск, Россия e-mail: stepanov@iate.obninsk.ru

(Поступило в Редакцию 11 января 2011 г.)

В условиях радиационных воздействий в материалах в нанометровых областях развивается пластическая деформация. Показано, что такая пластическая деформация связана с образованием и эволюцией двумерных дефектов и приводит к структурированию на нанометровом масштабе. Приведены экспериментальные результаты исследования микроструктуры и свойств металлических сплавов после инициирования пластического течения с помощью ионного облучения. В узком интервале параметров облучения формируются состояния с характерной кластерной наноструктурой, простирающиеся до значительных глубин ("эффект дальнодействия").

Введение

05

"Эффект дальнодействия" возникает при воздействии различных излучений на материалы и связан с изменением их структуры и свойств на глубинах, значительно превышающих глубину проникновения излучений, или на расстояниях, значительно превышающих размеры областей выделения энергии. "Эффект дальнодействия" может проявляться в металлических и диэлектрических материалах при внешних воздействиях различной природы: лазерные и ионные пучки, низкотемпературная плазма, импульсное электромагнитное и даже световое воздействия.

Экспериментально эффект наиболее изучен при воздействии на материалы ионными пучками. В этом случае он связан с образованием зоны радиационного влияния на больших глубинах, иногда на несколько порядков превышающих пробеги ионов [1–5]. Зона радиационного влияния представляет собой структурно-измененный слой с повышенной микротвердостью, в котором обнаруживаются аномально большие концентрации дефектов структуры (дислокационные петли, поры, дефекты упаковки), появляются новые кристаллические фазы. Эффект наблюдается как в поликристаллах, так и в монокристаллах [6]. Помимо структурных изменений "эффект дальнодействия" может сопровождаться сверхглубоким массопереносом, который, как правило, наблюдается при высоких плотностях тока и сравнительно низкой энергии ионов [7,8].

Поскольку единстенными универсальными дальнодействующими силами в материалах являются силы, связанные с упругими деформациями, для объяснения "эффект дальнодействия" в теоретических подходах рассматривают влияние упругой составляющей воздействия на различные статистические процессы в твердых телах. Возможно влияние упругих напряжений на процессы дефектообразования и диффузии вглубь материала рассматривается в [3,9–11]. Понимание ключевой роли коллективных эффектов в явлении дальнодействия привело к предположениям о влиянии кооперативных эффектов в массопереносе, о важной роли неравновесных фазовых переходов, о волновых механизмах распространения дальнодействия [12–16].

К сожалению, большинство моделей описывают процессы, разыгрывающиеся в областях непосредственно в зонах воздействий и не могущих перемещаться на значительные расстояния. Это связано с тем, что в результате неизбежных изменений структуры материала исчезает упругая дальнодействующая компонента того или иного процесса. Как правило, возникновения структур точечных дефектов, дислокаций, новых фаз приводят к релаксации упругих напряжений и к подавлению дальнодействия. В данной работе предлагается подход, в котором радиационное, "сверхглубокое" модифицирование структуры является результатом особой пластической деформации материала. При этом причиной дальнодействия являются возникающие при облучении упругие напряжения, но релаксация которых происходит по не совсем обычному пути пластического течения материала.

Механизмы радиационно-индуцированной пластической деформации

При радиационных воздействиях (ионных, лазерных, реакторных) в небольших областях в объеме материалов могут происходить существенные изменения плотности за счет создания избыточной концентрации дефектов структуры или выделения большого количества энергии в результате торможения/поглощения частиц радиационного потока. Это приводит к возникновению значительных механических напряжений и к развитию пластической деформации в ограниченных областях материала. При облучении ионными или лазерными пучками деформация связана с эффектом дилатации тонкого имплантированного ионами слоя или с термическим расширением скин-слоя соответственно. Например, в результате ионной имплантации на глубине проективного пробега h происходит расширение, приводящее к напряжению двуосного сжатия материала. Покажем, что величина возникающих напряжений может приводить к пластической деформации материала. В соответствии с оценками, проведенными в [17], если I — интенсивность потока ионов, то увеличение концентрации ионов в имплантируемом слое h в единицу времени есть I/h. Уменьшение концентрации n, внедренных в слой ионов за счет диффузии, есть Dn/h^2 , так что стационарная концентрация определяется как

$$n = \frac{Ih}{D},\tag{1}$$

где *D* — коэффициент диффузии. Концентрация внедренных атомов приводит к расширению

$$\frac{\Delta V}{V} = nb^3 = \frac{Ihb^3}{D_c},\tag{2}$$

b — межатомное расстояние, которое вызывает двуосное напряжение сжатия

$$\frac{\sigma}{E} \approx \frac{Ihb^3}{3D_c},\tag{3}$$

E — модуль Юнга. При значениях коэффициента диффузии внедренных атомов в металлах, соответствующих температурам облучения около 800 K, $D_c \sim 10^{-12} - 10^{-13}$ cm²/s, токе $I \approx 10^{14}$ cm⁻²s⁻¹, глубине проективного пробега $h \approx 10$ nm и b = 0.25 nm получим напряжения деформации до $(10^{-3} - 10^{-2})E$. Такие напряжения превышают предел текучести металлов.

При лазерном воздействии в импульсном режиме облучения оценка возникающих напряжений аналогична. Расширение скин-слоя оценивается из баланса поглощенной энергии и ее потери из слоя за счет теплопроводности [18].

В результате облучения нейтронами с энергиями, соответствующими быстрому спектру деления, или ионами с энергией выше 10 keV в материалах образуются каскады атом-атомных соударений. В зависимости от энергии первично выбитого атома, температуры и типа материала каскады представляют собой либо совокупность небольших областей точечных дефектов, либо компактную область, в которой вся энергия расходуется на ионизацию и смещения атомов. Как показывают расчеты [19], плотные каскады с энергией первично выбитого атома до 0.1 MeV могут иметь размер до 6-7 nm. Разделяют четыре стадии развития каскада атом-атомных соударений [20]. На 1-й стадии продолжительностью до 10⁻¹³ s происходит торможение ионов за счет атомных столкновений. На 2-й стадии микроскопической неравновесности энергия распределяется между атомами и составляет примерно $1-2 \, \text{eV}$ на атом. После стадии термализации (стадии "теплового пика") происходит акустическая релаксация. Здесь на временах $10^{-10} - 10^{-9}$ s на границе каскадной области возникают давления до 10^{11} Pa ($\sim E_{\rm casc}/d^3$) и происходит пластическая деформация материала в областях порядка 10 nm.

Таким образом, различные радиационные воздействия приводят к пластическим деформациям в объеме материалов. Особенность такой деформации заключается в том, что она, как правило, является стесненной и происходит на масштабах, меньших минимально возможного расстояния между дислокациями в металлах (~ 10 nm или ~ 40b, что соответствует предельно возможным плотностям дислокаций в металлах $\sim 10^{12} \, {\rm cm}^{-1}$). Например, при ионном облучении пластическая стесненная деформация происходит в области проективного пробега h (от 10 nm в зависимости от энергии и массы иона) и в тонком слое за областью имплантации также порядка h. Толщина деформируемого слоя оказывается меньше необходимого размера области образования дислокации. В таких условиях происходит пластическая деформация по бездислокационному механизму. Она связана с образованием и эволюцией уже не одномерных (дислокаций), а двумерных дефектов (плоскости сдвига, дефекты упаковки, двойниковые границы и т.п.). Плотность таких дефектов из-за незначительного упругого взаимодействия и безактивационного механизма образования может превышать 10⁷ ст⁻¹. При этом бездислокационное упрочнение металлов характеризуется, как минимум, на порядок большим модулем упрочнения. Если упрочнение связано, например, с двойникованием, то оценка упрочнения проводится с учетом того, что двойник зарождается неограниченным расширением дефекта упаковки под напряжением [17]

$$\tau = \frac{\partial U_{\partial y}}{\partial b} = (2 - 55) \cdot 10^{-3} G, \tag{4}$$

где *G* — модуль сдвига. В работе [17] можно найти различные варианты микроскопических механизмов пластической деформации за счет образования полисинтетических двойников, "ферм", двойникования двойников и т.п. Образование значительного объема дилатации может происходить, например, вследствие пересечения дефектов упаковки.

Наноструктурирование при пластической деформации

Бездислокационное пластическое течение сопровождается наноструктурированием материала. Это можно показать, используя феноменологическое рассмотрение пластического течения в рамках общего подхода Орнштейна и Цернике. Такой подход был впервые применен для анализа устойчивости однородной пластической деформации в [17]. Было показано, что макроскопическая потеря структурной устойчивости при деформации возникает в результате роста масштабов флуктуаций пластического течения. Несмотря на то, что структурная устойчивость деформации была исследована применительно к дислокационному пластическому течению, представляется, что использованный в [17] подход применим для анализа пластической деформации с любым микроскопическим, в том числе не дислокационным, механизмом.

Изменение плотности свободной энергии в результате отклонения пластической деформации от среднего значения δ или работа пластической деформации в единице объема представляется в виде

$$f = \sigma\delta + \frac{d\sigma}{d\delta}\frac{\delta^2}{2} = \sigma\delta + S\frac{\delta^2}{2},$$
 (5)

где σ — напряжение, $S = d\sigma/d\delta$ — модуль упрочнения. Полное изменение свободной энергии в объеме

$$\Delta F = \frac{1}{2} \int_{V} \left[S\delta^2 + \beta (\nabla \delta)^2 \right] dV.$$
 (6)

Здесь второй член связан с взаимодействием между флуктуациями деформации и отражает снижение плотности энергии всего объема в результате упругой разгрузки после стесненной деформации δ . Этот член меньше нуля ($\beta < 0$), и его величина зависит от типа дефекта структуры, с которым связана упругая разгрузка в точке после деформации. $|\beta| \approx El^2$, l — некоторая константа длины порядка межатомного расстояния b,

$$\Delta F = \frac{1}{2} \int_{V} \left[S\delta^2 - El^2 (\nabla \delta)^2 \right] dV.$$
⁽⁷⁾

Так как в подынтегральном выражении первый член — энергия пластической деформации, а второй — упругая релаксация после деформации, то все выражение должно быть больше нуля. Поэтому после представления деформации в виде суперпозиции плоских волн $\delta(r) = \frac{1}{N} \sum_{k} \delta_k e^{ikr}$ получаем, что минимум свободной энергии достигается при

$$S - El^2 k^2 = 0$$
 и $\lambda = 2\pi l \sqrt{\frac{E}{S}}$. (8)

λ представляет собой величину масштаба, т.е. характерной длины неоднородности микроструктуры при пластической деформации.

Приведенный подход является общим и не зависит от микроскопического механизма пластической деформации. Но поскольку модуль упрочнения *S*, характерная длина упругой разгрузки *l* зависят от типа структурного дефекта — носителя пластичности, масштаб флуктуаций пластической деформации определяется микроскопическим механизмом пластической деформации. Если пластичность дислокационная, то для простых металлов $S \approx (10^{-4}-10^{-3})E$ и $\lambda \approx (10^2-10^3)b$. При бездислокационном пластическом течении с модулем упрочнения $S \ge 10^{-3}E$ микроструктурные неоднородности развиваются на масштабах $\lambda/2 < 40b$, десятки нанометров, происходит наноструктурирование материала.

Нанокластерная структура металла, возникающая после ионного воздействия, была исследована нами с



Рис. 1. Сканирующая туннельная микроскопия. Микроструктура поверхности сплава Ni-41Cr-Mo после ионного облучения.

помощью сканирующей туннельной микроскопии. Сплав Ni-41Cr-Mo был облучен ионами Ar⁺ с энергией 30 keV, интенсивностью 10^{14} s⁻¹cm⁻² при температуре 870 K до дозы $1.5 \cdot 10^{18}$ cm⁻². На рис. 1 показана микроструктура поверхности после облучения, на которой хорошо различаются кластеры размеров 50–80 nm.

"Эффект дальнодействия"

В результате наноструктурирования происходит существенное объемное расширение. Это связано с чрезвычайно высокой концентрацией дефектов структуры, которые образуются в результате пластического течения и стабилизируют образующуюся наноструктуру. Как отмечалось, такими дефектами могут быть плоскости сдвига, двойниковые границы, дефекты упаковки, субструктуры которых связаны с существенным объемом дилатации. Объемное расширение, в свою очередь, приводит к пластической деформации следующего слоя, как показано на рис. 2. Деформация и наноструктурирование слоя за слоем (эффект "домино") распространяются



Рис. 2. Механизм наноструктурирования при ионном облучении.

$$\frac{K}{2} \left(\frac{\Delta V}{V}\right)^2 h \approx \frac{S}{2} \left(\frac{\delta V}{V}\right)^2 H,\tag{9}$$

где К — модуль объемного сжатия. Оценка дает

$$H\approx h\,\frac{K}{S}\leq 10^3h,$$

что при значениях *h* порядка 10 nm составляет десятки микрон. Это подтверждается экспериментально измерениями микротвердости по глубине облученных ионами сплавов [21].

На рис. З приведены изображения микроструктур облученного ионами сплава Ni-41Cr-Мо после послойного травления до рабочих глубин. Микроструктура поверхности этого сплава показана на рис. 1. Видно, что на глубинах, значительно превышающих глубину проективного пробега ионов ($h \approx 10$ nm), имеется нанослоистая структура.

Формирование нанокластерных структурных состояний было экспериментально изучено нами на многих металлических материалах. Имеются экспериментальные результаты по наноструктурированию в условиях ионной имплантации различных металлических материалов: металлы Zr, Ti; сплавы Fe-Ni-Cr, Ni-Cr, Cu-Ni, Fe-Cr, V-Ti-Cr; интерметаллиды — фазы Гейслера



Рис. 3. Сканирующая туннельная микроскопия. Микроструктура сплава Ni-41Cr-Мо после ионного облучения и послойного травления на глубину, nm: *1* — 509–60, *2* — 150–180, *3* — 250–290, *4* — 350–400.



Рис. 4. Изменения микротвердости после ионного облучения при различных температурах мишени и интенсивности ионного потока в сплаве Fe-18Cr (Ar⁺, 450 keV).

Cu₂MnAl и Ni₂MnGa [22-26]. Появлению наноструктур на значительных глубинах сопутствуют сильные изменения свойств приповерхностных слоев металлов. Изменяются микротвердость, электронные свойства [22]. Аномально высокие концентрации двумерных дефектов структуры в нанокластерах обусловливают сильные изменения формы и сдвиг рентгеновских дифракционных линий [24-26]. Важно, что образование таких нанокластерных структур при ионном облучении происходит в узком диапазоне параметров воздействия. Например, при высоких плотностях потока и низких температурах (низкой скорости диффузии) возникающие напряжения $\sigma/E \approx Ihb^3/3D$ превышают предел прочности, и происходит отслоение имплантированного тонкого слоя. Напротив, при высоких температурах в результате быстрой диффузии необходимая для бездислокационного пластического течения концентрация внедренных ионов на поверхности не создается. Это приводит к тому, что радиационно-индуцированная пластическая деформация, сопровождающаяся "эффектом дальнодействия" и проводящая к нанокластерной структуре, возникает в узком диапазоне интенсивностей и температур облучения. На рис. 4 приведены изменения микротвердости сплава Fe-18Cr после ионного облучения $(Ar^+, 40 \text{ keV})$ при различных температурах и плотностях потока. Аномальное увеличение (на порядок) микротвердости, связанное с образованием нанокластерной структуры, происходит при температурах около 750 К и потоках около 10¹⁴ ст⁻²s⁻¹.

Заключение

Воздействие радиационного излучения индуцирует пластическую деформацию в объеме материалов, кото-

рая является стесненной из-за малых масштабов областей, на которых она развивается. Деформация имеет бездислокационную природу и приводит к наноструктурированию приповерхностных областей металлов. Пластическая деформация и наноструктурирование материалов со значительным изменением их физических свойств происходит на глубинах, значительно превышающих глубину радиационного проникновения. Это обусловливает так называемый "эффект дальнодействия", наблюдаемый в различных материалах при пучковых воздействиях.

Работа выполнена при поддержке Федеральной целевой программы "Научные и научно-педагогические кадры инновационной России", государственный контракт № П649.

Список литературы

- [1] *Гусева М.И.* // Поверхность. Физика, химия, механика. 1982. № 4. С. 27–30.
- [2] Быков В.Н., Малынкин В.Г., Хмелевская В.С. // Вопросы атомной науки и техники. Сер. Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение. 1989. № 3. С. 45.
- [3] Мартыненко Ю.В. // Итоги науки и техники. Пучки заряженных частиц и твердое тело. 1993. Т. 7. С. 82–112.
- [4] Пивоваров А.Л. // Металлофизика и новейшие технологии. 1994. Т. 16. № 12. С. 3.
- [5] Гольцев В.П., Ходасевич В.В., Углов В.В., Ковчур Ю.С. // Вести АН БССР. 1985. № 4. С. 21.
- [6] Таран А.А., Батуричева З.Б., Чайковский Э.Ф. // Поверхность. 1988. № 2. С. 146.
- [7] Бадад-Захряпин А.А., Лагуткин М.И. // ФММ. 1987. Т. 52.
 № 1. С. 95–99.
- [8] Кузнецов Г.В. // МиТОМ. 1987. № 11. С. 21–27.
- [9] Федорова А.В., Васильева Е.В., Владимиров Б.Г. и др. // Поверхность. 1983. № 8. С. 123.
- [10] Douquette D.J., Krutenat R.C. // Phil. Mag. 1971. Vol. 24. N 192. P. 1411–1421.
- [11] Черников В.Н., Захаров А.П. // Поверхность. Физика, химия, механика. 1984. № 2. С. 79–88.
- [12] Левинсон И.Б., Маслов Д.Л. // Поверхность. Физика, химия, механика. 1987. № 4. С. 5.
- [13] Звонков С.Д., Лукьянчук Б.С., Степанов В.А. // Тр. ИОФ АН СССР. 1991. Т. 30. С. 83–113.
- [14] Девятко Ю.Н., Тронин В.Н. // ДАН СССР. 1983. Т. 269. С. 97–101.
- [15] *Кривелевич С.А.* // Высокочист. вещества. 1995. № 4. С. 109.
- [16] Тетельбаум Д.И., Пантелеев В.А., Азов А.Ю., Гуткин М.В. // Поверхность. Сер. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования. 2000. № 5. С. 87-89.
- [17] Штремель М.А. Прочность сплавов. Ч. II. Деформация. Учебник для вузов. М.: МИСиС, 1997. 527 с.
- [18] Лазерная техника и технология. Кн. 6. Основы лазерного термоупрочнения сплавов / Под ред. А.Г. Григорьянц, А.Н. Сафонова. М.: Высш. шк., 1977. 159 с.
- [19] Кирсанов В.В., Суворов А.Л., Трушин Ю.В. Процессы радиационного дефектообразования в металлах. М.: Энергоатомиздат, 1985. 272 с.

- [20] В.А. Степанов. // ВАНТ. Сер. Материаловедение и новые материалы. 2006. Вып. 1 (66). С. 54–62.
- [21] Хмелевская В.С., Антошина И.А., Кордо М.Н. // Физика металлов и металловедение. 2007. № 6. С. 652–656.
- [22] Хмелевская В.С., Соловьев С.П., Малынкин В.Г. Новое структурное состояние в металлических системах, индуцированное ионным облучением / В кн. Итоги науки и техники. Сер. Пучки заряженных частиц и твердое тело. М.: ВИНИИ, 1990. Т. 2. С. 151–193.
- [23] Хмелевская В.С., Богданов Н.Ю., Кордо М.Н. // Физика и химия обработки материалов. 2008. № 2. С. 14–18.
- [24] *Хмелевская В.С., Богданов Н.Ю., Кордо М.Н.* // Письма в ЖТФ. 2008. Т. 34. Вып. 23. С. 33-38.
- [25] Хмелевская В.С., Богданов Н.Ю., Горчаков К.А. // Физика и химия обработки материалов. 2008. № 5. С. 5–11.
- [26] *Хмелевская В.С., Кордо М.Н. //* ВАНТ. Материаловедение и новые материалы. 2008. Т. 72. № 3.. С. 151–156.