

УДК 539.215

О ФОРМИРОВАНИИ ПОЛОГО КАНАЛА ВДОЛЬ ТРАЕКТОРИИ ТЯЖЕЛОГО МНОГОЗАРЯДНОГО ИОНА В ОБЪЕМЕ МОНОКРИСТАЛЛА ГИПСА

И. В. Воробьева, В. Е. Монастыренко, В. П. Перельгин

Электронно-микроскопически исследована поверхность раскола облученного монокристалла гипса, пересекающая объемные треки ионов ^{132}Xe , лежащие в плоскости раскола. Установлено, что наиболее дефектная область (ядро) объемного трека представляет собой полый канал асимметричного сечения, обнаруживаемый практически на всей длине пробега иона.

Формирование треков тяжелых многозарядных ионов (ТМИ) в диэлектриках является следствием взаимодействия ТМИ с электронами тормозящей среды с последующей передачей энергии от электронной подсистемы решетки и различных процессов релаксации поглощенной энергии. Теоретически наиболее полно описаны выделение энергии ТМИ в электронной подсистеме тормозящей среды и перераспределение этой энергии между электронами и решеткой. В существенно меньшем объеме рассмотрены процессы релаксации поглощенной энергии (теплопроводность, фазовые превращения, миграция дефектов, распространение ударной волны), в значительной степени определяющие микроскопическую структуру и размеры треков.

Известные из литературы экспериментальные сведения о структуре и диаметре треков немногочисленны, иногда противоречивы и явно недостаточны для понимания физических процессов, приводящих к формированию треков. Трудность заключается в том, что реальная структура треков достаточно сложна и существенно зависит не только от энергии и массы ионов, но и от физических и химических свойств исследуемых объектов. Анализ работ многих авторов позволяет заключить, что в треках ТМИ велика концентрация различного рода дефектов, нарушены химические связи, существуют очаги дефицита плотности, локального плавления и других высокотемпературных фазовых превращений. Диаметр ядра (области наибольшей дефектности) трека оценивался различными методами и для большинства исследованных объектов составляет 5—10 нм [1]. Нужно отметить, что используемые при этих измерениях методики не позволяют измерять истинный размер ядра трека, так как не обладают достаточным разрешением. При исследовании в электронном микроскопе на просвет ядро трека оказывается завуалированным окружающей его областью напряженного вещества. Химическое травление треков приводит к тому, что уже на ранних стадиях процесса травления полностью вытравливается область максимальной дефектности.

В последнее время с помощью малоуглового нейтронного [2] и рентгеновского [3] рассеяния исследован дефицит плотности вещества в треках ТМИ в пластиках, слюдах и силикатах и установлено, что ядро трека обеднено веществом и представляет собой совокупность вакансий и микроскопических пор. С ростом энергетических потерь ТМИ линейная плотность

пор в ядре резко увеличивается, приводя к образованию протяженных зон с очень быстрой проницаемостью для травителей. Методики малоуглового нейтронного и рентгеновского рассеяния позволяют измерять усредненный размер трека, который зависит от энергии и массы ТМИ и типа облучаемого диэлектрика. В частности, установлено, что треки ионов ^{132}Xe с энергией ≈ 1 МэВ/нукл. в слюде и полиэтилентерефталате имеют диаметр ≈ 6 и 11 нм соответственно [2]. Однако указанные методики не позволяют исследовать микроскопическую структуру отдельного трека и определять размеры его ядра.

Цель нашей работы состояла в том, чтобы исследовать структуру сечений и размеры отдельных треков вдоль всей траектории движения ионов. Для этого электронно-микроскопически методом реплик исследована поверхность раскола облученного монокристалла гипса, пересекающая объемные треки, лежащие в плоскости раскола.

1. Методика эксперимента. Результаты

Объектом исследования были выбраны монокристаллы гипса ($\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$) в связи с тем, что на поверхности этих кристаллов формируются протяженные поверхностные треки, в структуре которых четко обнаруживаются подповерхностные полые каналы [4]. Кристаллы гипса характеризуются слоистой структурой: слои CaSO_4 разделены двойным слоем молекул воды. Расстояние между слоями CaSO_4 составляет ≈ 1.5 нм. Внутри слоев CaSO_4 действуют сильные ионные связи, а связь между слоями осуществляется слабыми силами Ван-дер-Ваальса. Кристаллы легко раскалываются по плоскостям спайности, проходящими между слоями воды.

Исследовались монокристаллы гипса размером $1 \times 1 \times 0.5$ см, облученные на циклотроне ЛЯР ОИЯИ (г. Дубна) потоком коллимированных ионов ^{132}Xe с энергией ≈ 1 МэВ/нукл. Траектории ионов были ориентированы под малым $\sim 1^\circ$ углом к плоскостям спайности, и их ориентация не совпа-

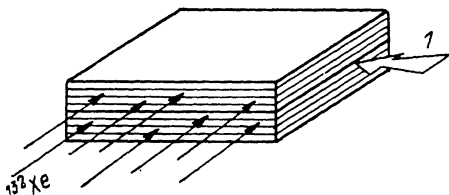


Рис. 1. Схема облучения монокристалла гипса и положение плоскости раскола (1) между плоскостями спайности.

дала ни с одним из основных кристаллографических направлений (рис. 1). Доза облучения составляла $\approx 2 \cdot 10^{10}$ ион/см². После облучения образец раскалывался по плоскости спайности и поверхность раскола оттенялась золотом под углом $\approx 8^\circ$ к поверхности перпендикулярно направлению облучения. Методика оттенения и снятия углеродных реплик позволяла фиксировать на репликах линию ребра между облучаемой гранью и поверхностью раскола. Так как длина пробега ионов ^{132}Xe в гипсе не превышает 15 мкм, мы исследовали участок поверхности раскола, прилегающей к облучаемой грани.

Основной результат проводившихся опытов заключается в том, что в плоскости раскола на участке вблизи ребра, длина которого порядка длины пробега ионов, обнаружены канавки и ступени, ориентированные вдоль направления облучения. Типичные электронно-микроскопические снимки участков поверхности раскола на различном удалении l от ребра представлены на рис. 2. Высота ступеней монотонно уменьшается от 5—7 до 3 нм по мере удаления от ребра. По-видимому, формирование таких ступеней происходит, когда поверхность раскола, пересекая трек, претерпевает скачок уровня. Как правило, по длине ступени наблюдаются изменения ее знака, что приводит к образованию ответвляющихся ступеней (рис. 3). То обстоятельство, что ступени имеют длину, гораздо меньшую, чем длина пробега ионов, обусловлено наклоном траектории ионов отно-

сительно плоскости раскола. С удалением от ребра длина и высота ступеней монотонно убывают, что качественно согласуется с уменьшением энергетических потерь ионов, так как чем дальше от облучаемой грани расположено сечение трека, тем большая часть траектории иона находится в объеме кристалла (рис. 4). В наших опытах длина участков ступеней одного знака

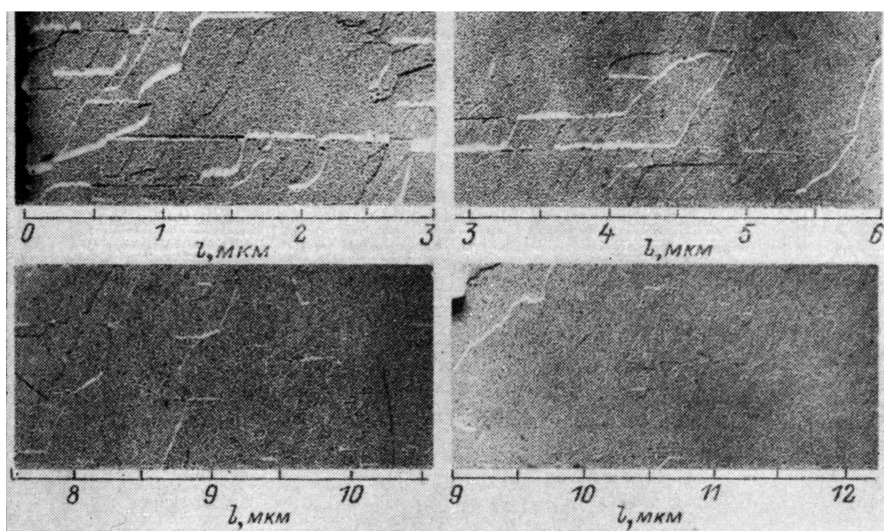


Рис. 2. Ступени и канавки на участках поверхности раскола, находящихся на различном расстоянии l от облучаемой грани.

уменьшается от $(6 \div 10) \cdot 10^2$ нм вблизи ребра до $(1 \div 2) \cdot 10^2$ нм на расстоянии 12 мкм от ребра.

Иногда участки ступеней переходят в канавки (рис. 5), которые свидетельствуют о наличии в ядре треков полых каналов. Канавки, по-видимому, формируются тогда, когда поверхность раскола при пересечении

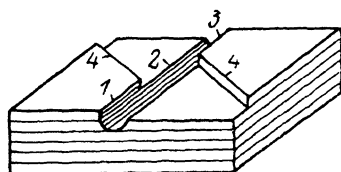


Рис. 3. Схематическое изображение объемного трека (канала), пересекаемого плоскостью раскола.

На участках трека 1, 3 плоскость раскола испытывает скачок уровня с образованием ответвляющихся ступеней 4; на участке 2 формируется канавка.

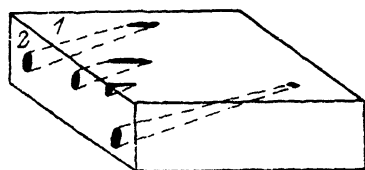


Рис. 4. Пересечение плоскостью раскола (1) каналов объемных треков.

Треки ориентированы под малым углом к плоскости раскола. Сечение каналов уменьшается с увеличением длины пробега ионов в объеме кристалла. 2 — облучаемая грань.

трека не претерпевает скачок уровня. Тот факт, что канавки наблюдаются реже, чем ступени, обусловлен не их различной природой, а тем, что при пересечении трека плоскость раскола с малой вероятностью сохраняет свой уровень. Ширина канавок и соответственно каналов уменьшается вдоль длины пробега ионов от 25 до 15 нм, что существенно больше высоты ступеней. Если считать высоту каналов равной высоте наибольших ступеней (≈ 7 нм), то можно сделать вывод, что сечение каналов имеет форму, вытянутую в направлении плоскостей спайности.

Плотность ступеней и канавок на поверхности раскола соответствует плотности потока падающих ионов. При высоте каналов ≈ 7 нм и линей-

ной плотности ступеней $(1.5 \div 2.5) \cdot 10^4 \text{ см}^{-1}$ плотность каналов в перпендикулярном каналам сечении составляет $\approx (2 \div 3) \cdot 10^{10} \text{ см}^{-2}$. Таким образом, можно сделать вывод, что ступени и канавки формируются при пересечении плоскостью раскола треков в объеме монокристалла гипса.

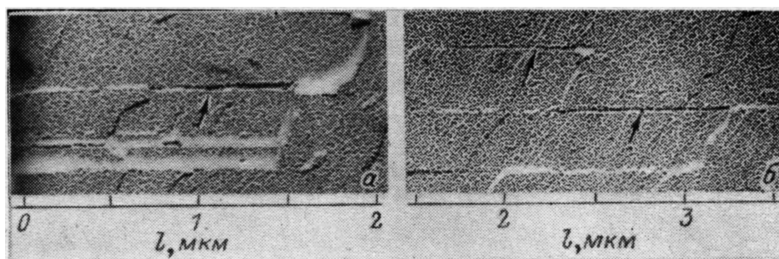


Рис. 5. Канавки (указаны стрелками) на поверхности раскола вблизи облучаемой грани (а) и на расстоянии 3 мкм (б).

Для непосредственного наблюдения полого канала были выполнены опыты, в которых облучению подвергались тонкие ($\approx 50 \text{ нм}$) пластинки гипса, исследовавшиеся после облучения в электронном микроскопе на просвет. Поток ионов ^{132}Xe направлялся перпендикулярно поверхности

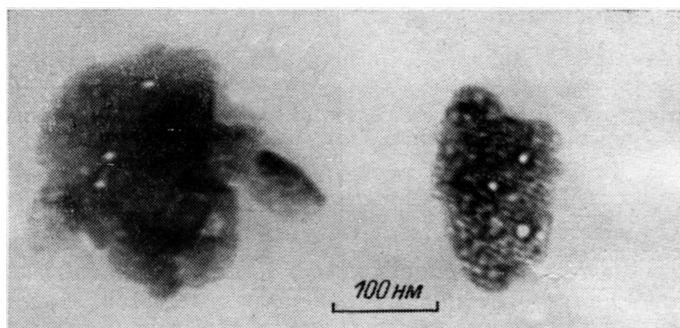


Рис. 6. Сквозные отверстия в тонких пластинках гипса.

пластинок (плоскостям спайности гипса). После облучения в пластинках обнаружены сквозные цилиндрические отверстия диаметром 15—20 нм (рис. 6).

Совокупность описанных опытов позволяет утверждать, что ядро объемного трека в гипсе представляет собой полый канал асимметричного сечения, обнаруживаемый практически на всей длине пробега иона.

2. Обсуждение результатов

Обсудим возможные причины формирования полых каналов вдоль треков в гипсе, выполнив приближенные оценки физических параметров, характеризующих состояние вещества гипса в цилиндрической области вокруг траектории ТМИ, где происходит начальное выделение энергии. Выделенная энергия в расчете на одну молекулу гипса определяется соотношением

$$q = \alpha (dE/dx) m / \rho r^2, \quad (1)$$

где dE/dx — энергетические потери иона на единице длины пути; m , ρ — масса молекулы и плотность гипса; r — радиус области начального выделения энергии в решетке. Множитель α введен в (1) в связи с тем, что часть выделенной ТМИ энергии уносится из рассматриваемой нами области высокоэнергетическими δ -электронами. Придав величинам, входящим в (1),

следующие значения: $dE/dx \approx 10^{11}$ эВ/см, $m \approx 2.9 \cdot 10^{-22}$ г, $\rho \approx 2.3$ г/см³, $r \approx 3 \cdot 10^{-7}$ см, $\alpha = 2/3$ [5], получаем $q \approx 30$ эВ. Считая, что вещество в области начального выделения энергии находится в квазигазообразном состоянии, температуру и давление внутри этой области можно оценить из соотношений

$$T = 2q/3nk, \quad P = \zeta nkT/m, \quad (2)$$

где n — число атомов в молекуле гипса, k — постоянная Больцмана. При $n=12$ и $q=30$ эВ получаем $T \approx 1.9 \cdot 10^4$ К, $P \approx 2.1 \cdot 10^{11}$ эрг/см² $\approx 2 \cdot 10^5$ атм.

Для того чтобы сформировался наблюдаемый нами канал, вещество за время, меньшее, чем время остывания нагретой области $\tau \sim 2r^2/4\kappa \approx 10^{-10} \div 10^{-11}$ с ($\kappa \approx 10^{-3} \div 10^{-2}$ см²/с — коэффициент температуропроводности), должно быть вытеснено в окружающую матрицу. О механизме вытеснения вещества можно судить лишь предположительно. При указанных давлении и температуре могут проявлять себя поатомное внедрение вещества в пространство между плотноупакованными слоями CaSO₄, заполненное молекулами воды, дислокационный или крауднионный механизмы переноса массы по плотноупакованным слоям. С уверенностью можно утверждать, что процессы переноса массы и тепла должны идти преимущественно в направлении плотноупакованных слоев. Поэтому при ориентации траектории иона параллельно плоскостям спайности сечение канала должно быть вытянутым в направлении плоскостей спайности, что согласуется с экспериментально наблюдаемой формой канала.

В случае, когда траектории ионов ориентированы перпендикулярно плоскостям спайности, сечения каналов имеют форму окружности, что объясняется отсутствием анизотропии переноса вещества в направлении, перпендикулярном оси каналов.

Заметим, что при формировании полого канала в объеме монокристалла гипса вещество вытесняется в объем окружающей матрицы, деформация которой затруднена. В этом заключается причина отличия размеров объемных каналов в гипсе от каналов приповерхностных треков [4], при формировании которых высокотемпературный газ способен деформировать или прорывать тонкий слой, отделяющий канал от поверхности.

В заключение заметим, что полые каналы вдоль траектории ТМИ в объеме диэлектрика нами обнаружены впервые. Причина образования наблюдаемых каналов, видимо, заключается в уникальном свойстве монокристаллов гипса: малой прочности, обусловленной слабой связью между слоями CaSO₄. Разделяющие слои CaSO₄ и слабо с ними связанные молекулы воды могут играть активную роль в разрушении решетки.

Не исключено, что полые каналы в структуре треков могут быть обнаружены и в других кристаллогидратах, например в медном купоросе (CaSO₄ · 5H₂O), а также в полимерах, характеризующихся рыхлой структурой и сравнительно невысокой температурой разложения. Именно в указанных объектах, как и в гипсе, нами зафиксированы наибольшие по размеру поверхности треки, содержащие приповерхностные каналы [4]. В более плотных и термостойких объектах, где поверхностные треки имеют существенно меньшие размеры, формирование объемных полых каналов в треках маловероятно.

Список литературы

- [1] Флейшер Р. Л., Прайс П. Б., Уокер Р. М. Треки заряженных частиц в твердых телах. М.: Энергоатомиздат, 1981. Ч. I. С. 13—22.
- [2] Albrecht D., Armbruster P., Spohr R., Roth M. // Rad. Effects. 1982. V. 65. P. 145.
- [3] Dartyge E., Durand J. P. // Phys. Rev. 1981. V. B23. N 10. P. 5213—5229.
- [4] Воробьева И. В., Гегузин Я. Е. и др. // ФТТ. 1986. Т. 28. № 8. С. 2402—2405.
- [5] Isumi K. // J. Phys. Soc. Jap. 1965. V. 20. N 6. P. 915—932.