

УДК 539.21; 539.12.04

К.М. МУКАШЕВ, Б.А. ТРОНИН

АННИГИЛЯЦИЯ ПОЗИТРОНОВ В МОДИФИЦИРОВАННЫХ ОБЛУЧЕНИЕМ ПРОТОНАМИ СПЛАВАХ ТИТАНА

(Представлена академиком НАН РК Н.Ж. Такибаевым)

Изложена теория позитронной диагностики углового распределения аннигиляционных фотонов. Описаны: процесс приготовления образцов на основе титана с примесью олова и германия, и методика облучения сплавов протонами с энергией 30 МэВ до экспозиционных доз $5 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-2}$ и $2,5 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-2}$. Измерено импульсное распределение электронов в процессе температурного отжига дефектной структуры твердых тел. Установлено влияние пластической деформации и легирующих примесей на радиационную повреждаемость исследуемых материалов.

Введение. Как известно, дефекты радиационного происхождения в металлах в основном имеют точечную структуру. Для получения более полной картины о природе и поведении этих дефектов в исследуемых материалах нужна информация о локальных характеристиках электронов, в частности, о плотности и импульсном распределении последних в области структурных нарушений. Наиболее перспективным в плане избирательности является метод электронно-позитронной аннигиляции (ЭПА), позволяющий глубже и всесторонне изучить и понять физические явления, как с точки зрения единичных точечных дефектов, так и комплекса связанных состояний «атом примеси – вакансия», без разрушения исследуемого материала. Если аннигилирующая e^-e^+ -пара находится в системе центра масс в состоянии покоя ($v = 0$), то в лабораторной системе два аннигиляционных фотона излучались бы строго в противоположные стороны при углах разлета $q = 0$. Внедренный в металл позитрон, в результате взаимодействия с электронами и фононами среды, полностью термализуется и по существу находится в состоянии покоя. Однако этого нельзя утверждать об электроне, другом непосредственном участнике процесса аннигиляции. Следовательно, вектор v (рисунок 1б) определяет в основном скорость электрона. Ввиду малости угла можно положить $\sin q \approx q$ и для плоскости XOZ , в которой обычно производятся все процессы измерений, при условии, что суммарный импульс $|P_z + P_x| \ll m_0 c$, для каждого из компонентов результирующего импульса можно написать:

$$P_z = m_0 c \theta_z; \quad P_x = m_0 c \theta_x. \quad (1)$$

При этом попечная компонента импульса P_z приводит к отклонению фотонов от коллинеарности в плоскости XOZ . Движение центра масс аннигилирующей пары с импульсом P_x вдоль направления распространения фотонов обуславливает дополнительный сдвиг энергии на величину ΔE , вызванный эффектом Доппеля:

$$\Delta E = \hbar \Delta v \text{ или, } \Delta v = \frac{P_x c}{\hbar}, \quad (2)$$

где Δv – изменение частоты γ – квантов.

На основании этого могут быть предложены два ядерно-физических метода исследования структуры твердых тел с использованием явления ЭПА: измерения углового распределения аннигиляционных фотонов (УРАФ) и доплеровского уширения аннигиляционной линии (ДУАЛ). В данной работе используется первый из этих методов, который позволяет получать информацию о функции распределения электронов в импульсном пространстве. При покоящемся позитроне импульс аннигиляционных фотонов определяется импульсом электрона. Последний для идеального газа электронов распределен равномерно по всей сфере Ферми. Измерение УРАФ сводится к выбору тонкого слоя сферы на расстоянии P_z от его центра, расположенного перпендикулярно этой компоненте импульса (рисунок 1а). Площадь этого круга пропорциональна разности квадратов $P_F^2 - P_z^2$ и определяет вероятность аннигиляции позитронов в интервале углов $-\theta_F \div +\theta_F$. Иначе говоря, спектр угловой корреляции $N(q)$ представ-

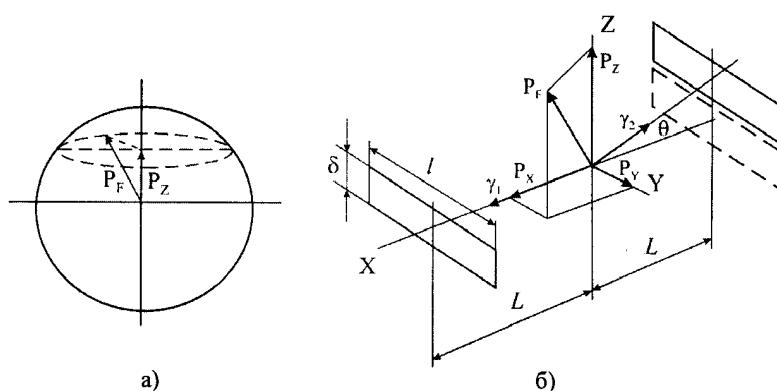


Рис.1. Сечение поверхности Ферми для газа свободных электронов (а) и схема линейно-щелевой геометрии с разложением импульса e^-e^+ -пары на компоненты (б)

ляет перевернутую параболу, которая обращается в нуль в точках пересечения кривой с осью абсцисс при $q = q_F$, соответствующих граничному импульсу Ферми $P_F = m_e c \cdot q_F$.

Подобная форма распределения аннигиляционного излучения характерна для некоторых простых металлов и некоторых полупроводниковых кристаллов. Принято считать, что параболическая форма распределения вызвана именно электронами проводимости или валентными электронами, поведение которых аналогично поведению вырожденного электронного газа. Данное распределение математически может быть описано уравнениями вида:

$$N_p(P) = N(0)(P_F^2 - P_z^2) \text{ для } P_z \leq P_F \quad (3)$$

или

$$N_p(\theta) = N(0)(\theta_F^2 - \theta^2) \text{ для } \theta \leq \theta_F \quad (4)$$

Оба распределения обращаются в нуль за пределами P_F и q_F соответственно. Если сравнить теоретически рассчитанный спектр УРАФ для валентных электронов каждого отдельно взятого металла и экспериментально измеренного, то можно легко установить достаточно заметное отличие их между собой, особенно за пределами центральной параболической части. Поэтому принято считать, что для любого исследуемого материала экспериментальные спектры УРАФ можно разложить по крайней мере на две составляющие: центральную параболу и так называемый «хвост», представляющий собой широкое угловое распределение фотонов. Параболическую составляющую спектра УРАФ в противовес широкой компоненте называют «узкой». Природа «широкоугловой» компоненты УРАФ обусловлена взаимодействием валентных элек-

тронов с ионной решеткой, вследствие чего состояние последних не соответствует граничному импульсу P_F и оказывается «размазанным», а также аннигиляцией позитронов с электронами ионного остова, обладающими импульсом, значительно превышающим фермиевский. Благодаря туннельному эффекту, позитрон может взаимодействовать с внешними электронами ионного остова, что является причиной возникновения в спектре угловых распределений широкой компоненты, соответствующей импульсам электронов, отличных от валентных. Закономерности УРАФ в этом случае достаточно корректно описываются функцией Гаусса:

$$N_g(\theta) = N_g(0) \exp\left(-\frac{\theta^2}{\theta_g^2}\right), \quad (5)$$

где θ_g – параметр гауссианы, который определяет глубину проникновения волновых функций позитрона в ионный остов [1].

Исходя из этого, общую кривую УРАФ для любого материала в первом приближении можно представить в виде:

$$N(\theta)N_p(0)(\theta_F^2 - \theta^2)f(\theta + N_g(0) \exp(-\theta^2 / \theta_g^2)) + N_0 \quad (6)$$

Нормирующий множитель $f(q)$ в этом уравнении принимает только следующие значения:

$$f(\theta) = \begin{cases} 1 & \text{при } |\theta| \leq |\theta_F| \\ 0 & \text{при } |\theta| > |\theta_F| \end{cases}. \quad (7)$$

Постоянные множители $N_p(0)$, $N_g(0)$ и N_0 в уравнении (6) определяют, соответственно, интенсивности параболы, гауссианы и уровень фона случайных совпадений. Зная значение общей площади под всей кривой $S_0 = \int_{-\infty}^{+\infty} N(\theta)d\theta$, можно вычислить вероятности аннигиляции позитронов со

свободными электронами и электронами ионного остова, соответственно:

$$W_p = S_p / S_0; \quad W_g = S_g / S_0, \quad (8)$$

а также перераспределение вероятности аннигиляции позитронов между электронами проводимости и ионного остатка

$$F = W_p / W_g = S_p / S_g \quad (9)$$

Пример разложения экспериментального спектра на компоненты представлен на рис. 2. Вследствие размытия параболической составляющей в области $q = q_F$, значение угла Ферми обычно определяют путем экстраполирования. Изменения в структуре исследуемого материала обязательно отражается на внешнем виде спектра.

Методика приготовления образцов и технические характеристики установки УРАФ. Для изучения радиационных эффектов в бинарных сплавах титана, созданных облучением протонами высокой энергии, иодидный титан особой чистоты (99,99 %) сплавлялся с одним из компонентов (Ge, Sn) в определенной концентрации. Перед сплавлением, после загрузки шихты, в печи создавался вакуум 10^{-1} Па. После этого в печь запускался очищенный инертный газ – аргон, в атмосфере которого проводились все процессы плавки. Обеспечение гомогенности сплава достигалось многократной переплавкой слитков (до пяти-шести раз), которые затем прокатывались при температуре 900°C до полосы толщиной 1 мм и 2 мм и отжигались в вакууме 10^{-5} Па при температуре 900°C в течение 2-х часов. Из полосок толщиной один миллиметр готовились образцы, имеющие исходное, отожженное состояние; полоски толщиной два миллиметра повторно подвергались пластической деформации $e = 50\%$ прокатыванием при комнатной температуре. По контрольным образцам методами химического и спектрального анализа определялось истинное содержание компонентов в материале.

Германий и олово с атомными размерами 2,78 Å и 3,16 Å и температурами плавления 937°C и 232°C , соответственно, расположены в IV-группе периодической системы элементов и имеют объемно-центрированную кубическую (ОЦК) и тетрагональную кристаллические решетки. Разница в атомных размерах по отношению к Ti составляет -5,4% и +7,5%, соответственно, для Ge

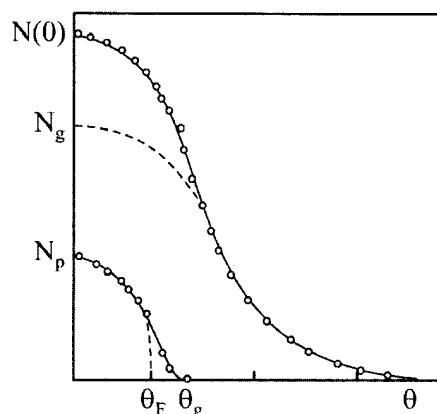


Рис. 2. Разложение спектра угловой корреляции на компоненты

и Sn. С целью изучения характера радиационных дефектов, созданных облучением протонами, были приготовлены бинарные сплавы титана с этими элементами следующих составов: 0; 0,8; 1,5; и 3,1 ат. % Ge и 0; 1,2; 2,5; 4,3; 6,2 и 7,6 ат.% Sn. Из отожженных и пластически деформированных материалов электроискровым способом были вырезаны стандартные образцы диаметром 15 мм. Поверхности этих образцов тщательно шлифовались и подвергались электрохимической полировке в растворе следующего состава: HF – одна часть, HNO_3 – три части, H_2O – две части. Приготовленные таким образом материалы изучались на установке угловой корреляции аннигиляционного излучения.

Основные технические характеристики установки:

- угловое разрешение установки может изменяться в пределах 0,5 – 1,5 мрад;
- временное разрешение по быстрому каналу соответствует 100 нс, а по медленному каналу может изменяться в интервале 0,3 – 1,0 мкс;
- шаг перемещения подвижного детектора устанавливается ступенчато по 0,25; 0,5 и 1,0 мрад;
- нестабильность скорости счета в течение трех суток непрерывной работы не превышает двух стандартных отклонений;
- максимальная допустимая интенсивность поступающей информации по медленному каналу не хуже $3 \cdot 10^5 \text{ c}^{-1}$;
- максимально достигнутый вакуум в измерительной камере не хуже 10^{-4} Па;
- активность источника позитронов ^{22}Na – $3,7 \cdot 10^8 \text{ Бк}$ (10 mKu).

Методика облучения материалов на ускорителе. При облучении металлов заряженными частицами (электроны, протоны, а – частицы), последние расходуют свою энергию на образование радиационных дефектов и на нагрев образца. Конечная структура материала определяется именно условиями облучения. Например, облучение при криогенных температурах позволяет сохранить не только сложные комплексные нарушения, но и простейшие френкелевские пары – вакансии и междуузельные атомы. При высокотемпературных облучениях в материале образуются комплексы дефектов от небольших скоплений до микропор. Контроль за состоянием облучаемых образцов в широком температурном диапазоне лучше всего осуществлять термопарным методом.

Высокую температуру образца можно обеспечить за счет радиационного нагрева, путем изменения степени теплоотвода с него и величины потока частиц [2]. В работе [3] была показана практическая независимость величины термо-ЭДС как от потока, так и от вида излучений. Для измерения температуры образца была использована термопара группы хромель-алюмель, как наиболее устойчивая к воздействию излучения до флюенсов 10^{21} см^{-2} [4]. С учетом этих обстоятельств, облучение образцов на изохронном ускорителе У-150 проводилось в воздушной атмосфере с охлаждаемым водой основанием и принудительным обдувом образца парами жидкого азота. При интенсивности заряженных частиц $(1,5 \div 2) \cdot 10^{12} \text{ см}^{-2} \text{ с}^{-1}$ температура образца не превышала $60\text{--}70^\circ\text{C}$. Разница в значениях температуры с обеих сторон образца составила не более 10°C , поэтому при облучении заряженными частицами головка термопары защемлялась под образцом в центре только с одной стороны в небольшом углублении оправы коллиматора.

Равномерность потока заряженных частиц на поверхности образца обеспечивалась за счет расфокусировки пучка так, чтобы размеры пятна на мишени в $1,5 \div 2$ раза превышали диаметр образца. Замерив среднее значение тока пучка I , можно определить дозу облучения в течение заданного времени t или времени, необходимое для достижения требуемой дозы при данной величине тока пучка через образец:

$$D = 6,25 \cdot 10^{12} I t / S, \quad (10)$$

где S – площадь образца.

Обсуждение результатов. Облучению протонами с $E = 30 \text{ МэВ}$ до флюенсов $5 \cdot 10^{15}$ и $2,5 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-2}$ подвергались образцы сплавов Ti-Sn и Ti-Ge, имеющие исходное отожженное и деформированное на $\epsilon = 50\%$ состояния с целью выяснения не только роли легирующих примесей, но и предыстории материала в формировании конечной дефектной структуры сплавов. Следует подчеркнуть, что для протонов с $E = 30 \text{ МэВ}$ толщина образцов в 1 мм была совершенно недостаточна для обеспечения их полного торможения. Расчетное значение энергии протонов на обратной стороне образцов отличается от энергии падающих частиц на 5–6 МэВ [5]. Все изучаемые образцы облучались фактически на «прострел» и с целью уточнения некоторых аспектов данной проблемы наряду с 30 МэВ-ными протонами, были использованы и частицы с энергией $E = 6,5 \text{ МэВ}$. Результаты этих исследований методом УРАФ представлены в таблице 1.

Анализ результатов эксперимента показывает, что для исходного состояния материалов повышение концентрации легирующих элементов слабо влияет на характер аннигиляции позитронов как по вероятности $W_p = S_p/S_o$, так и по углу Ферми q_F . В то же время облучение протонами отожженных сплавов приводит к существенному возрастанию вероятности аннигиляции позитронов при флюенсе $5 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-2}$ в среднем на 36% для Ti и 50% для сплавов, содержащих 0,8 и 1,5 ат.% Ge. Тем не менее, эти изменения параметра составляют около половины соответствующего прироста для них, полученного в результате пластической деформации. При флюенсе протонов $2,5 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-2}$ вероятность аннигиляции W_p принимает значения, ненамного превышающие для деформированного состояния Ti и первых двух составов, тогда как сплав Ti-3,1 ат.% Ge проявляет определенную стабильность по отношению к протонному облучению. Но в данном случае мы имеем дело с кажущейся стабильностью этого сплава благодаря исходному высокому значению аннигиляционного параметра, относительно которого определяется его радиационная повреждаемость. Если же исходить из абсолютного значения параметра W_p , то оно в этом случае значительно превышает соответствующие данные для других сплавов этой системы. Вероятно, уровень первоначального флюенса протонов $5 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-2}$ еще не выходит за пределы инкубационного пе-

Таблица 1. Вероятность аннигиляции позитронов в облученных протонами и деформированных сплавах титана

| Состав сплавов, ат.% | Отожж. | Дефор. $\epsilon=50\%$ | Состояние материалов | | | |
|----------------------|--------|------------------------|-----------------------------------|-----------------------|-------------------------------------|-----------------------|
| | | | Флюенс протонов, $E=30$ МэВ | | | |
| | | | $5 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-2}$ | После $\epsilon=50\%$ | $2,5 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-2}$ | После $\epsilon=50\%$ |
| Ti | 0,22 | 0,38 | 0,30 | 0,41 | 0,42 | 0,45 |
| Ti-0,8 Ge | 0,21 | 0,39 | 0,30 | 0,39 | 0,37 | 0,42 |
| Ti-1,5 Ge | 0,21 | 0,35 | 0,32 | 0,39 | 0,39 | 0,40 |
| Ti-3,1 Ge | 0,29 | 0,37 | 0,32 | 0,34 | 0,47 | 0,39 |
| Ti-1,2 Sn | 0,25 | 0,44 | 0,36 | 0,32 | 0,38 | 0,36 |
| Ti-2,5 Sn | 0,22 | 0,39 | 0,29 | 0,34 | 0,31 | 0,38 |
| Ti-4,3 Sn | 0,26 | 0,41 | 0,28 | 0,37 | 0,38 | 0,40 |
| Ti-6,2 Sn | 0,27 | 0,41 | 0,34 | 0,33 | 0,37 | 0,46 |
| Ti-7,6 Sn | 0,26 | 0,43 | 0,30 | 0,36 | 0,41 | 0,41 |
| Погреш. \pm | 0,02 | 0,02 | 0,02 | 0,02 | 0,02 | 0,02 |

риода, при котором радиационная повреждаемость материала еще относительно невысокая. Только дальнейшее повышение флюенса протонов до $2,5 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-2}$ вызвало интенсивный рост радиационной повреждаемости сплава. Облучение этих сплавов из деформированного на $\epsilon = 50\%$ состояния при флюенсе $5 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-2}$ практически не вносит заметных изменений в значения аннигиляционных параметров. При последующем пятикратном возрастании флюенса протонов наблюдается заметное повышение концентрации позитронных ловушек в структуре деформированных материалов относительно отожженного их состояния.

Если рассматривать результаты облучения протонами материалов из деформированного состояния относительно того же исходного деформированного на $\epsilon = 50\%$ состояния, то приращение аннигиляционного параметра W_p , соответственно и в повреждаемости изучаемых сплавов, оказывается еще более незначительным, т.е. вероятность аннигиляции позитронов со свободными электронами W_p снижается от 18,4% для Ti до 5,4% для сплава Ti – 3,1 ат.% Ge. Следовательно, относительно высокая радиационная стойкость деформированного материала к облучению протонами по сравнению с их исходным отожженным состоянием можно считать установленным фактом.

В свете этого, значительный интерес может представить поведение сплавов системы Ti – Sn, подверженных тем же видам обработки, что и

сплавы Ti – Ge. Если принять значение аннигиляционного параметра W_p , соответствующего деформированному на $\epsilon = 50\%$ состоянию сплавов, как насыщающее, то полученные результаты для облученных протонами сплавов из отожженного состояния свидетельствуют о том, что в этих материалах отсутствует факт стремления аннигиляционного параметра к насыщению в пределах достигнутого уровня флюенса – $2,5 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-2}$. Увеличение аннигиляционного параметра в зависимости от флюенса характеризует соответствующий рост концентрации радиационных дефектов в структуре материалов. Наибольшее повышение концентрации позитронных ловушек в результате протонного облучения обнаруживают сплавы, содержащие в 1,2 и 7,6 ат.% Sn, т.е. именно эти сплавы, как и при а-облучении, проявляют определенную нестабильность к воздействию радиации. В среднем по концентрациям исследованных сплавов повреждаемость обеих систем из отожженного состояния в результате протонного облучения примерно одинакова.

Анализ результатов облучения сплавов до флюенса $5 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-2}$, имеющих предварительно деформированное состояние, свидетельствует о возникновении совершенно противоположной картины. Вероятность аннигиляции позитронов практически для всех изученных сплавов данной системы принимает в этом случае заметно меньшие значения, чем до облучения. Эту тенденцию она сохраняет при повторном облучении до флюенса $2,5 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-2}$, что свидетельствует о значи-

тельной роли предыстории материала и природы легирующей примеси в образовании структурных нарушений в результате протонного облучения. Первоначальное снижение вероятности аннигиляции позитронов W_p в результате протонного облучения деформированных материалов, вероятно, связано с соответствующим падением эффективности структурных нарушений, созданных в результате пластической деформации, к захвату позитронов. Последующее повышение W_p , очевидно, вызвано возможной радиационно стимулированной перестройкой дислокационной структуры сплавов в результате протонного облучения. Данное обстоятельство в какой-то степени может быть уточнено определением значения параметра конфигурации R_c для одного и того же материала при различных ситуациях [6], в том числе после пластической деформации и протонного облучения из отожженного и деформированного состояний:

$$R_c = \left| \frac{N'_v - N'_f}{N'_c - N'_f} \right|, \quad (11)$$

где N – значение скорости счета в структурно-чувствительной области спектра УРАФ; нижние индексы v и f у символов N относятся к аннигиляции позитронов со свободными и оставшими электронами, соответственно; верхние индексы t и f соответствуют аннигиляции позитронов из захваченного и свободного состояний. Считается, что данный параметр не зависит от концентрации дефектов в материале, а определяется только их структурой.

Так, например, для сплава Ti–7,6 ат.% Sn в результате протонного облучения до флюенса $5 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-2}$ конфигурационный параметр принимает значение $R_{c1} = 1,77 \pm 0,05$, что заметно выше его значения для термических вакансий, равного $R_c = 1,50$ [6,7]. Пятикратное повышение флюенса протонов практически не вносит заметного изменения в значение параметра R_c . Следовательно, наблюдаемое при этом увеличение аннигиляционного параметра W_p с 15 до 63 % в основном связано с соответствующим ростом концентрации радиационных дефектов в сплаве. В результате пластической деформации параметр конфигурации принимает значение $R_{c2} = 2,37 \pm 0,05 > R_{c1}$, что несколько выше, чем для расплавленного металла $R = 2,04$ [6]. Действительно, дислокационная структура, характерная для деформирован-

ного состояния материала, должна отличаться от радиационно созданной. В результате последующего облучения этого сплава из деформированного состояния конфигурационный параметр принимает некоторое промежуточное значение $R_{c3} = 1,85 \pm 0,05 < R_{c2}$, свидетельствуя о существовании определенных различий между структурами сплава, созданными при различных внешних условиях. Но, тем не менее, в любом случае они носят вакансийный характер, о чем свидетельствуют результаты расчета импульса Ферми.

Что касается закономерности изменения импульса Ферми по θ_F , то во всех рассмотренных случаях внешнее воздействие на материалы приводит к его заметному снижению (таблица 2). Если при сопоставлении рассматривать общую тенденцию усредненных по концентрациям данных, то можно видеть, что для образцов, подверженных деформации, облучению из отожженного и деформированного состояний, значительных различий в величине угла Ферми q_F практически отсутствует. Для отожженного состояния $\theta_F = 6,3$ мрад., то пластическая деформация и облучение из отожженного и деформированного состояний при различных дозах снижает его в среднем до величины 5,75 мрад. В общем случае для металлов и сплавов со стабильной структурой естественно ожидать, что облучение и деформация приводят к образованию дефектов различного характера. Соответственно, разнообразным должен быть и характер локального изменения электронной плотности в окрестности дефектов в этих материалах. Но поскольку в данном случае электронная плотность в центрах захвата термолизованных позитронов практически тождественна для всех изученных сплавов, и значение θ_F определяется импульсным распределением свободных электронов в окрестности аннигилирующего позитрона, прежде всего граничным значением импульса, то справедливо допущение равнозаданной и идентичной электронной плотности дефектов, вводимых протонным облучением во всех изученных сплавах.

Расчет среднего размера этих центров на основании одноловушечной модели захвата позитронов для сплава Ti–2,5 ат.% Sn, облученного протонами с $E=30$ МэВ до флюенса $2,5 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-2}$, дает величину $R_v = 10 \text{ \AA}$, т.е. в исследуемых материалах можно предполагать образование вакансийных скоплений, находящихся ниже пред-

Таблица 2. Вариации импульса Ферми по q_F в облученных протонами и деформированных сплавах титана

| Состав сплавов, ат.% | Состояние материалов | | | | | |
|----------------------|---------------------------|---------|-----------------------------------|-------------------------------------|--------------|-----------------------|
| | Отожж. $\epsilon=50\%$ | Деформ. | Флюенс протонов, $E=30$ МэВ | | | |
| | | | $5 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-2}$ | $2,5 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-2}$ | После отжига | После $\epsilon=50\%$ |
| Ti | 6,33 | 5,66 | 5,75 | 5,72 | 5,66 | 5,63 |
| Ti-0,8Ge | 6,40 | 5,66 | 5,70 | 5,75 | 5,52 | 5,68 |
| Ti-1,5Ge | 6,33 | 5,24 | 5,76 | 5,75 | 5,59 | 5,70 |
| Ti-3,1Ge | 6,00 | 5,75 | 6,00 | 5,76 | 5,79 | 5,71 |
| Ti-1,2Sn | 6,16 | 5,57 | 5,83 | 5,75 | 5,75 | 5,75 |
| Ti-2,5Sn | 6,21 | 5,66 | 5,76 | 5,79 | 5,66 | 5,75 |
| Ti-4,3Sn | 6,48 | 5,83 | 5,75 | 5,57 | 5,66 | 5,66 |
| Ti-6,2Sn | 6,54 | 5,75 | 6,04 | 5,83 | 5,50 | 5,81 |
| Ti-7,6Sn | 6,48 | 5,66 | 5,83 | 5,70 | 5,83 | 5,81 |
| Погреш. ± | 0,05 | 0,05 | 0,05 | 0,05 | 0,05 | 0,05 |

лов разрешающей способности просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ) [8]. Разумеется, характер радиационных дефектов, созданных а-частицами и протонами не может отличаться существенно. Заряженные частицы с большой массой, имея меньшую энергию, при одном и том же значении флюенса могут создавать большую концентрацию дефектов. Так, например, по данным авторов [8], а-частицы при одинаковых условиях создают в Mo в 2 раза больше концентрацию радиационных дефектов, чем протоны.

В то же время протоны с энергиями 6,5 МэВ и 30 МэВ создают, по данным этих же авторов, одинаковое количество видимых в ПЭМ дефектов. Данное положение не подтверждается результатами исследований позитронной диагностики [9]. С целью установления действительно го положения методом сравнительной оценки, Ti и его сплав, содержащий 7,6 ат.%Sn, имеющие исходное отожженное состояние, отдельно от других образцов, но в идентичных условиях были облучены протонами с $E = 6,5$ МэВ до флюенса $2,5 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-2}$. При равном флюенсе, низкоэнергетические протоны приводят к возрастанию вероятности аннигиляции со свободными электронами W_p на 15 – 20% по сравнению с протонами с $E=30$ МэВ. Очевидно, такое возрастание стало возможным за счет повышения концентрации радиационных дефектов, поскольку низкоэнергетические протоны при прохождении через материалы испытывают полное торможение, и эффект от облучения усиливается благодаря полному

бросу протонами энергии в конце своего пробега. Кроме того, здесь также оказывается большая вероятность сохранения моновакансационных дефектов, которые, естественно, находятся за пределами разрешающей способности экспериментальной аппаратуры, каким является ПЭМ, но эффективно могут быть зафиксированы средствами позитронной диагностики. Именно все эти особенности рассматриваемой проблемы хорошо подтверждаются результатами изохронного отжига структурных дефектов в облученных протонами сплавах титана.

Методика проведения отжиговых измерений. Учитывая экспериментальные возможности нашей установки, отжиговые исследования необходимо было провести так, чтобы исключить вероятные противоречия в трактовке полученных данных и в то же время получить максимум информации при высокой экспрессности. Дело в том, что скорость счета в максимуме спектра УРАФ $N(0)$ достаточно чувствительна к присутствию в кристалле структурных дефектов. При возрастании концентрации дефектов в металле, значение $N(0)$ так же повышается и при достижении ими уровня 10^4 ат.% в изменениях параметра $N(0)$ наступает насыщение. При этом длина свободного пробега позитронов в кристалле не превышает среднего расстояния между точечными дефектами и они полностью оказываются захваченными дефектами. В этих условиях параметры ЭПА в точности описывают особенности электронной структуры дефектной

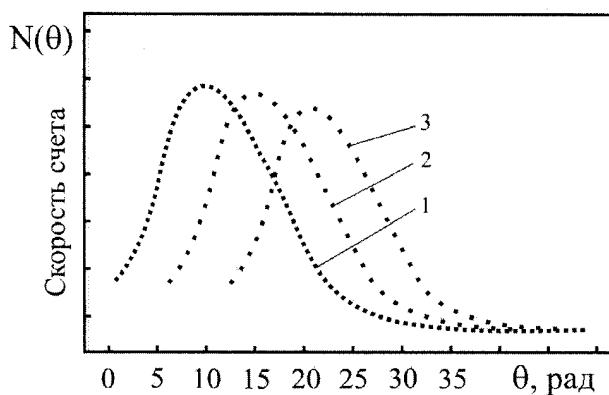


Рис. 3. Температурная зависимость формы спектра УРАФ металла со структурными дефектами при:
1 – 20°C; 2 – 200°C; 3 – 300°C.

области исследуемого материала. Данное обстоятельство четко просматривается из приведенных на рисунке 4 спектров УРАФ, полученных при трех значениях температуры изохронного отжига титана и смещенных относительно друг – друга по оси абсцисс для удобства анализа. Видно, что с увеличением температуры интенсивность спектра в области максимума последовательно уменьшается.

С учетом изложенного, методика выполнения изохронного отжига на установке угловой корреляции аннигиляционного излучения сводилась к следующему. В измерительной камере с образцом и источником ^{22}Na или создавался вакуум $\sim 10^{-3}$ Па и при котором проводились все процессы отжига, или после откачки вакуума до уровня 10^{-1} Па запускался в камеру под небольшим давлением (выше атмосферного) очищенный инертный газ – аргон.

Затем при комнатной температуре неоднократно измерялась скорость счета в максимуме спектра и усреднялась за вычетом фона – $\bar{N}(0)$, для дефектного материала. После этого температура образца поднималась до заданной величины и образец выдерживался при этой температуре в течение времени Dt и охлаждался до комнатной температуры с последующим измерением (не менее 5 – 6 раз) скорости счета $N_i(0)$, которые снова усреднялись с вычетом фона. Далее нагрев производился до более высокой температуры и вся процедура отжига и измерения $N_i(0)$ повторялась. В результате этих измерений устанавливалась зависимость между интенсивностью счета в максимуме спектра $N(0)$ и температурой отжига. С целью сравнения меж-

ду собой отдельные кривые отжига, скорости счета, соответствующие состоянию образца после отжига при разных температурах $N_i(0)$, нормировались к значению $N_0(0)$ для начального состояния:

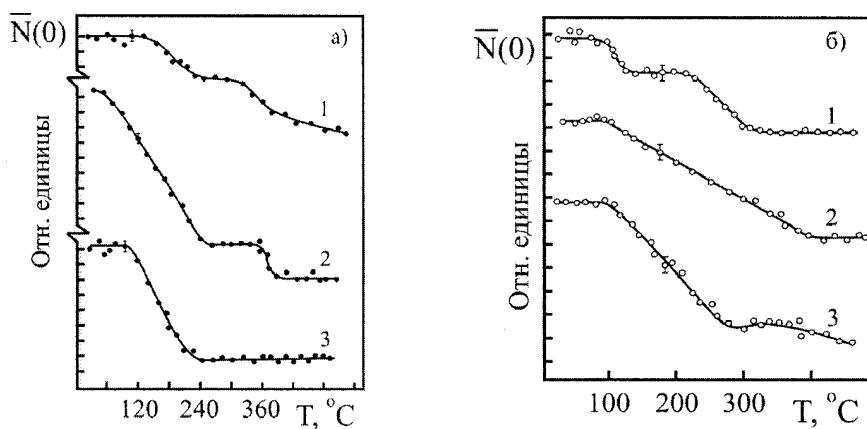
$$N(0) = (N_0(0) - N_i(0))/N_0(0) \quad (12)$$

Таким образом, суть проведения изохронного отжига методом ЭПА основана на возврате кривой УРАФ для дефектного материала до отожженного состояния. При этом процессы, имеющие низкую энергию активации E_a протекают раньше, а те, которые обладают более высоким значением E_a – при повышенных температурах. В результате этого обычно устанавливается стадии отжига дефектов и определяется соответствующая им энергия активации E_a . С учетом допущений, согласно которым в заданном интервале температур отжигается только один тип структурных нарушений, энергия активации миграции дефектов отдельно по каждой стадии возврата определялась по формуле [10]:

$$E_a = kT_0 \ln(\nu \cdot k / \alpha E_a), \quad (13)$$

где $\nu \approx 10^{13} \text{ c}^{-1}$ – частота Дебая; $k = 8.62 \cdot 10^{-5}$ эВ/К – постоянная Больцмана; T_0 – средняя температура стадии отжига (К); $\alpha = \Delta(T^{-1})/\Delta t$; $\Delta(T^{-1}) = T_H^{-1} - T_k^{-1}$; T_H и T_k – начальная и конечная температуры стадии; Dt – время отжига при данной температуре (T). Данная формула представляет собой трансцендентную функцию, решение которой относительно E_a осуществляется методом последовательного приближения при заданной погрешности расчета $\pm 0,01$ эВ.

Для отжиговых исследований были выбраны Ti и его сплав Ti – 7,6 ат.%Sn, подвергнутые всем трем рассмотренным видам внешних воздействий. Результаты этих исследований отражены на рисунке 4 (а и б) в виде кривых изохронного отжига соответственно. Здесь же, в каждом случае, для установления природы структурных превращений приведены кривые отжига деформированных материалов, полученные ранее. Сравнение результатов отжига для всех состояний материалов позволяет сделать весьма важные выводы о некотором перераспределении дефектов в кристаллической структуре, подвергнутой комбинированной обработке. Для Ti в результате облучения протонами до флюенса $2,5 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-2}$ из деформированного состояния в области темпе-



1 – деформированное на $e = 50\%$; 2 – облученное протонами из деформированного состояния;
3 – то же из отожженного состояния.

Рис. 4. Кинетика отжига Ti (а) и сплава Ti – 7,6 ат. % Sn (б), подвергнутых различным воздействиям

ратур от 60°C до 220°C наблюдается ярко выраженная низкотемпературная стадия (рисунок 5а, кривая 2). Такое аномально низкое значение температуры начала восстановления свойств дефектных металлов было обнаружено впервые. Оно возникло как результат трансформации, эволюции и перераспределения исходной дефектной структуры, созданной сильной пластической деформацией, под действием мощного протонного излучения. Данная стадия, как по форме, так и по интервалу температурной области проявления, значительно отличается от соответствующей стадии кривой отжига для деформированного титана (кривая 1). Изменение скорости счета в максимуме спектра УРАФ при этом составило $DN_1 = 11\%$ в отличие от $DN = 5\%$, полученного в результате отжига деформированного титана. Кроме того, в интервале температуры 330°C – 360°C наблюдается вторая, высокотемпературная стадия, для которой $DN_2 = 2,5\%$. При этом значения энергии активации миграции дефектов по стадиям приняли значения $E_{a1} = 1,21$ эВ и $E_{a2} = 1,93$ эВ, соответственно. Если исходить из результатов отжига деформированного Ti с параметром $E_{a1} = 1,43$ эВ, то в данном случае мы имеем дело, вероятно, с более простыми, точечными вакансационными дефектами. Значение $E_{a2} = 1,93$ эВ с точностью до второго знака совпадает с аналогичным параметром для деформированного Ti. Подобное обстоятельство еще раз свидетельствует в пользу предположения об эволюции дислокационной структуры и частичной ее трансформации в вакансационную. Для деформирован-

ного сплава Ti–7,6 ат.%Sn характерной была кри- вая отжига с двумя явно выраженными стадиями возврата свойств (рисунок 5б, кривая 1). Облучение этого материала протонами приводит к стиранию резкой границы раздела между стадиями (кривая 2), которые плавно переходят одна в другую, занимая единой температурный интервал от 150 до 450°C с присущим для этого случая значением $E_a = 1,60$ эВ, которая, вероятно, соответствует некоторому более сложному комплексу, созданному радиационно-стимулированным процессом, протекающим в материалах в результате протонного облучения, имеющему вакансационно-примесную и одновременно дислокационную структуру.

Облучение Ti и его сплава с Sn из отожженного состояния сопровождается образованием в структуре материалов дефектов с одной стадией возврата (кривая 3). Значения температуры начала возврата свойств для этих материалов практически совпадают и находятся в области 140 – 150°C . Полный отжиг структурных дефектов в Ti завершается при температуре $\sim 250^\circ\text{C}$, тогда как для сплава он затягивается до температуры 300 – 320°C .

Амплитуда изменения скорости счета при отжиге как для Ti, так и для сплава в этом случае значительно выше соответствующей характеристики для первой стадии отжига Ti, имеющего деформированное состояние. Это свидетельствует о решающей роли высокоэнергетических протонов в образовании структурных нарушений вакансационного характера перед пласти-

ческой деформацией. Однако, в отличие от деформационных дефектов, где первая стадия отжига связана с уходом вакансационных дефектов, облучение сплава заряженными частицами, очевидно, создает более сложные конфигурации типа вакансационно-примесных комплексов. В пользу этой точки зрения говорит тот факт, что, с одной стороны, данной стадии соответствует значение $E_a = 1,42$ эВ, с другой – полное восстановление его свойств завершается при более высокой температуре, чем для иодидного титана.

Заключение. Таким образом, радиационная повреждаемость изученных материалов, возникающая при бомбардировке протонами с $E = 6,5$ МэВ, в определенной степени аналогична повреждениям, созданным при электронном облучении. Облучение протонами с $E=30$ МэВ сопровождается образованием в сплавах вакансационных комплексов. Изохронный отжиг структурных нарушений в этом случае также протекает в одну стадию в тех же температурных интервалах, но с более высоким уровнем средней концентрации точечных дефектов. Присутствие в исходной структуре материала деформационных дефектов и легирующих элементов приводит к значительному изменению спектра радиационных повреждений. Роль исходных дефектов в радиационном повреждении сплавов титана в результате облучения протонами с энергией 30 МэВ проявляется не только в торможении развития процесса распухания, но и в эволюции, трансформации и перераспределении первичных дефектов. Даные факты подтверждают необходимость учета присутствия в материале примесных атомов и предварительно созданных структурных нарушений.

ЛИТЕРАТУРА

1. Ferrel R.A. Theory of positron annihilation in Solids // Rev. Mod. Phys. 1956. Vol. 28, N3. P. 308 – 337.
2. Шалаев А.М. Изменение показаний термопары под воздействием потока заряженных частиц // Металлофизика. 1975, N5.- С. 84 – 87.
3. Kelly M.J., Johnston W., Bauman C. Effects of Nuclear Radiation of Thermocouples // Fourth Symp. On temperature: Its Measurement and Control in Science and Industry. Columbys, Ohio. 1961. P. 127 – 129.
4. Такибаев Ж.С., Ибрагимов Ш.Ш., Батырбеков Г.А., Околович В.Н. Модернизированный реактор ВВР-К и его использование в народном хозяйстве // Вестник АН Каз. ССР. 1972, N2. С.15 – 20.
5. Mikhalenkov V.S. Tails of the angular correlations of annihilation photons in metals // Phys. Status Solidi (a). – 1974. Vol.24, N2. P. K107 – K109.
6. Mantl S., Triftshauser W. Defect annealing studies of metals by Positron annihilation and electrical resistivity measurements // Phys. Rev. B. 1978, Vol. F17, N4. P. 1645 – 1652.
7. Triftshauser W. Positron trapping in Solid and liquid metals // Phys. Rev. B. 1975. Vol. 12, N11. P. 4634 – 4639.
8. Плетнев М.Н., Платов Ю.М. Кинетика накопления радиационных дефектов в металлах при температурах II – стадии возврата с учетом переходных процессов // ФММ. 1974. Т. 37, N2. С. 429 – 431.
9. Dlubek G. Untersuchungen zur Konzentration und Ausheilkinetik von Kristallbaufehlern in Metallen mit Hilfe der Positronenannihilation // Krist. und Techn. 1976. Vol.11, N11. P.1153-1158.
10. Мукашев К.М. Физика медленных позитронов и позитронная спектроскопия. Алматы, 2010. 508 с.

Резюме

Қатты денелердегі құрылымдық ақауларды позитрондық тәсілмен зерттеудің теориясы баяндалады. Аннигиляциялық фотондардың бүрыштық корреляциясын тіркеу арқылы, титаның қалайы және германиймен байытылған қорытпаларындағы ақаулардың туындау сипаттары зерттелінген. Осы материалдарды энергиясы 30 МэВ болатын протондармен $5 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-2}$ және $5 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-2}$ флюенске дейін атқылау кезіндегі құрылымдық ақаулардың пластикалық деформацияға және байытуышы элементтердің түрлеріне байланысты өзгеру зандалықтары анықталды.

Summary

The theory of positron diagnostics written of structural defects in solids. By measuring the angular distributions of annihilation photons studied the nature of structural defects in binary alloys of titanium, alloyed with tin and germanium. The influence of plastic deformation and dopants on the radiation damage of the materials studied by irradiation with protons of $E = 30$ MeV to fluencets of $5 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$, $5 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2}$.

Казахский национальный педагогический университет им. Абая.

г. Алматы

Поступила 06.12.2010 г.