

МИНИСТЕРСТВО НАУКИ И ВЫСШЕГО ОБРАЗОВАНИЯ РОССИЙСКОЙ ФЕДЕРАЦИИ  
ФЕДЕРАЛЬНОЕ ГОСУДАРСТВЕННОЕ АВТОНОМНОЕ ОБРАЗОВАТЕЛЬНОЕ  
УЧРЕЖДЕНИЕ ВЫСШЕГО ОБРАЗОВАНИЯ  
«НОВОСИБИРСКИЙ НАЦИОНАЛЬНЫЙ ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ  
УНИВЕРСИТЕТ» (НОВОСИБИРСКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ УНИВЕРСИТЕТ, НГУ)

Факультет **ФИЗИЧЕСКИЙ**

Кафедра **ФИЗИКИ ПЛАЗМЫ**

Направление подготовки **03.04.02 ФИЗИКА**

Образовательная программа: **МАГИСТРАТУРА**

**ВЫПУСКНАЯ КВАЛИФИКАЦИОННАЯ РАБОТА  
МАГИСТЕРСКАЯ ДИССЕРТАЦИЯ**

Соколова Евгения Олеговна

(Фамилия, Имя, Отчество автора)

Тема работы Блистеринг металлов при их облучении протонами с энергией 2 МэВ

**«К защите допущена»**

Заведующий кафедрой

Иванов А.А.

ученая степень, звание

д-р. физ.-мат. наук, проф.

должность, место работы

зам. директора ИЯФ СО РАН

...../  
(фамилия И., О.) / (подпись, МП)

«.....».....2018 г.

**Научный руководитель**

**Макаров А.Н.**

ученая степень, звание

канд. физ.-мат. наук

должность, место работы

н.с. ИЯФ СО РАН

...../  
(фамилия И., О.) / (подпись, МП)

«.....».....2018 г.

Дата защиты: «.....».....2018 г.

Новосибирск, 2018

## Оглавление

<b>Введение</b> .....	3
<b>Глава 1. Теория блистеринга</b> .....	7
<b>1.1 Торможение ионов в веществе</b> .....	7
<b>1.2 Условия блистерообразования</b> .....	9
<i>1.2.1 Растворимость и коэффициент диффузии</i> .....	11
<i>1.2.2 Температура</i> .....	13
<i>1.2.3 Плотность потока</i> .....	13
<i>1.2.4 Энергия первичных частиц</i> .....	14
<i>1.2.5 Кристаллическая ориентация мишени</i> .....	15
<i>1.2.6 Влияние предварительной обработки</i> .....	16
<i>1.2.7 Угол падения</i> .....	17
<b>Глава 2. Постановка эксперимента</b> .....	18
<b>Глава 3. Экспериментальные результаты</b> .....	22
<b>3.1 Определение размера протонного пучка</b> .....	22
<b>3.2 Облучение меди при высокой температуре</b> .....	24
<b>3.3 Облучение меди при низкой температуре</b> .....	29
<i>3.3.1 Мелкозернистая медь 99,996%</i> .....	29
<i>3.3.2 Крупнозернистая медь 99,99996%</i> .....	31
<i>3.3.3 Мелкозернистая медь 99,99996 %</i> .....	37
<b>3.4 Облучение тантала и медно-танталовых соединений</b> .....	38
<b>Выводы и заключение</b> .....	45
<b>Список литературы</b> .....	49

## Введение

В Институте ядерной физики СО РАН функционирует установка [1], предназначенная для применения в бор-нейтрозахватной терапии злокачественных опухолей (БНЗТ) [2, 3]. Установка (Рис. 1) выполнена на базе тандемного ускорителя с вакуумной изоляцией. Генерация нейтронов осуществляется при сбросе протонного пучка с энергией 2 МэВ и током до 5 мА на нейтроногенерирующую мишень [4], выполненную в виде тонкого литиевого слоя толщиной порядка 100 мкм, напыленного на медный диск диаметром 100 мм. В результате пороговой реакции  ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$  генерируются нейтроны.

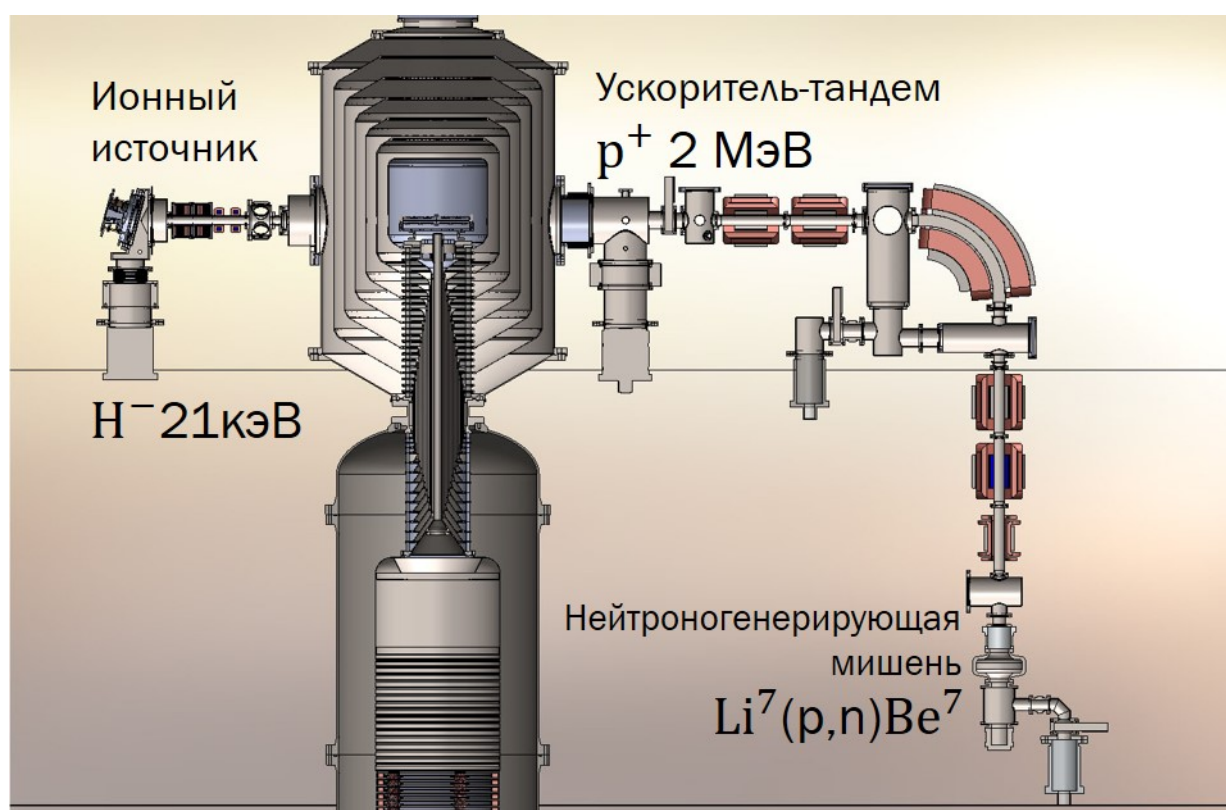


Рис. 1 Схема ускорительного источника эпитепловых нейтронов.

Процесс генерации нейтронов предъявляет определенные требования к мишени. Размер мишени определяется несколькими условиями: с одной стороны, необходимо подавить дозу протонов отдачи при проведении терапии, с другой – обеспечить необходимую терапевтическую дозу нейтронов. По результатам расчетов [4], проведенных для разных размеров

мишени, выяснено, что оптимальным является диаметр 100 мм. При таком диаметре мишени возможно осуществление теплосъема турбулентным потоком воды. Толщина литиевого слоя, при прохождении которого происходит пороговая реакция, выбирается с учетом энергии протонов. Порог энергии протонов для осуществления нейтроногенерирующей реакции составляет 1,882 МэВ. Протоны с энергией ниже пороговой бесполезны с точки зрения генерации нейтронов, поэтому основную часть своей энергии они должны терять в материале подложки. Таким образом, толщина литиевого слоя выбирается такой, чтобы на выходе из него энергия протонов была немного меньше порога реакции  ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ . После прохождения литиевого слоя протоны продолжают тормозиться в конструкционном материале подложки мишени, нагревая его.

В ходе нейтроногенерирующей реакции образуется радиоактивный изотоп  ${}^7\text{Be}$ . Для предотвращения распространения бериллия-7 с парами лития необходимо не допустить нагревания литиевого слоя до температуры плавления лития 182°C. Для этого материал подложки должен обладать высоким коэффициентом теплопроводности и/или быть достаточно тонким. Учитывая этот факт, в качестве материала подложки можно использовать медь, бóльшим коэффициентом теплопроводности обладает только серебро. Также при торможении протонов в материале подложки возникает гамма- и рентгеновское излучение. Было выяснено, что для минимизации мощности этого излучения подходит использование молибдена и тантала [5].

Под воздействием ионной бомбардировки в приповерхностном слое любого твердого вещества происходит целый ряд физических процессов. С точки зрения теплопроводности на материал может оказывать сильное влияние появление на поверхности развитой структуры [6, 7]. В ходе облучения ионами выявляются границы зерен твердых веществ, что приводит к образованию бугорков или наоборот ямок, длительная бомбардировка

металлов приводит к сильному протравливанию зерен и к последующему отшелушиванию поверхностного слоя.

Впервые образование пузырей микронных размеров после облучения ионами  $H^+$ ,  $D^+$  и  $He^+$  поверхности изоляторов наблюдалось В. Праймаком и М. Каминским в 1963 г. [8, 9]. При бомбардировке ионами  $H^+$  и  $He^+$  на поверхности  $Cu$ ,  $Ni$  и  $Al$  появление характерных пузырей наблюдали В. Праймак и И. Лутр [10]. Наблюдаемое физическое явление получило название блистеринг (от англ. blister – пузырь).

Блистеринг является крайне нежелательным явлением с точки зрения материаловедческого вопроса создания термоядерных реакторов [6]. В ходе реакции синтеза и  $(\alpha, n)$  – реакциях внутри реактора образуются высокоэнергетичные атомы гелия, которые бомбардируют стенку термоядерного реактора. В ходе этой бомбардировки происходит образование блистеров на поверхности конструкционных материалов, что усиливает эрозию поверхности особенно в начальный период работы реактора. Разрушение первой стенки термоядерного реактора приводит к охлаждению плазмы и соответственно к сокращению рабочего импульса, а также это снижает ресурс работы реактора.

Нейтроногенерирующая мишень, используемая для терапии БНЗТ, подвергается воздействию пучка протонов с энергией 2 МэВ. При возникновении блистеров на поверхности мишени, характеризующихся вспучиванием и отслаиванием тонкого слоя, теплопроводность поверхности подложки будет уменьшаться, приводя к перегреванию лития. Таким образом, используемый материал должен быть устойчив к блистерообразованию.

Экспериментальные данные об образовании блистеров при облучении 2 МэВ пучком протонов крайне скудны. Считается [6], что блистеринг характерен для сочетания газ-металл, в случае если газ плохо растворим в данном металле. Для водорода такими металлами являются  $Al$ ,  $Mo$ ,  $Fe$ ,  $Cu$ ,  $Ag$ ,

W, Pt, Au. В работах [6, 7] указана нижняя граница флюенса для водородного блистеринга  $10^{18}$  см<sup>-2</sup> на меди. Это ограничивает применение меди в качестве материала подложки, так как при протонном токе 10 мА на мишени диаметром 10 см критическая доза накопится за 20 минут, в то время как проведение терапии требует час непрерывного облучения [3].

Для того, чтобы выяснить, при каких условиях образуется блистеринг и как он может повлиять на материал, были проведены специальные эксперименты по изучению блистеринга. Условия проведения эксперимента стремились максимально приблизить к планируемым при облучении: энергия протонов 2 МэВ, температура металлов порядка 150°C. В данной работе описаны результаты облучения протонным пучком с энергией 2 МэВ образцов из меди с различной чистотой и структурой поверхности, а также образцов тантала и медно-танталовых соединений, изготовленных по различным технологиям.

## Глава 1. Теория блистеринга

### 1.1 Торможение ионов в веществе

Блистеринг – это процесс образования на поверхности твердого тела дефектов, выраженных в появлении пузырей или отслаивании тонкого слоя, под воздействием ускоренного пучка ионов. Существует целый ряд процессов, происходящих при взаимодействии бомбардирующих ионов с твердым телом [11]:

1. Неупругие соударения с электронами тормозящего вещества. Потери энергии при таких соударениях обусловлены возбуждением или ионизацией атомов или молекул.
2. Неупругие соударения с ядрами, вызывающие тормозное излучение, возбуждение ядер или ядерные реакции.
3. Упругие соударения со связанными электронами.
4. Упругие соударения с ядрами или атомами, когда часть кинетической энергии передается атомам мишени.
5. Черенковское излучение, возбуждаемое частицами, которые движутся в среде со скоростью, большей фазовой скорости света. Однако при ионной имплантации частицы движутся со скоростью меньше фазовой скорости света, поэтому черенковское излучение отсутствует.

Среди этого списка процессов наиболее заметный вклад в торможение частиц вносят неупругие соударения с электронами и упругие соударения с ядрами [11]. Причем взаимодействие с электронами в основном ведет к потере энергии, а столкновения с ядрами определяют траекторию исходной частицы. Какой из этих эффектов является преобладающим зависит от энергии и массы ускоренных частиц и масс и порядкового номера атомов бомбардируемого вещества.

Для расчета торможения первичных ионов в веществе введено понятие сечения электронного и ядерного торможения  $S_{e,n}$  [11]:

$$S_{e,n} = \frac{1}{N} \left( \frac{dE}{dx} \right)_{e,n}, \quad (1)$$

где  $N = \frac{\rho}{M_2}$  – число атомов в единице объема ( $\rho$  [кг/м<sup>3</sup>] – плотность облучаемого материала;  $M_2$  [кг] – масса атома мишени);  $\frac{dE}{dx}$  [Дж] — потери кинетической энергии ионом на единицу длины пути в процессе столкновений с атомами или электронами мишени.

Полный пробег иона в материале мишени определяется из соотношения:

$$R = \frac{1}{N} \int_0^{E_0} \frac{dE}{S_n(E) + S_e(E)}, \quad (2)$$

где  $R$  [м] – средний пробег иона в материале при его начальной энергии  $E_0$  [Дж].

Для легких высокоэнергетичных ионов (в данной работе рассматриваются протоны с энергией 2 МэВ) выполняется соотношение  $(dE/dx)_e \gg (dE/dx)_n$ . Тогда в выражении для полного пробега (2) можно учитывать вклад только сечения электронного торможения, которое растет с падением энергии, поэтому основную часть энергии частица теряет перед моментом остановки (пик Брэгга).

Наибольший практический интерес представляет проекция пробега иона на направление имплантации  $R_p$ , которая определяет глубину проникновения иона вглубь материала. Торможение высокоэнергичных протонов с энергиями порядка 2 МэВ происходит практически по прямой, поэтому их полный и спроецированный пробеги отличаются на незначительную величину. В справочнике [12] приведены графики полного и спроецированного пробегов, которые сливаются в районе энергий в нескольких сотен килоэлектронвольт



для легких элементов (Li, Be, C, Al...) и в области энергий порядка 1-2 МэВ для тяжелых элементов (Ta, W, Au...). Пробег протонов с энергией 2 МэВ в литии равен 160 мкм, Be – 50, Al – 44, Ti – 30, V – 23, для Fe, Cu, Wo, W – менее 20 мкм. В работе [13] в качестве примера рассмотрено торможение протонов с энергией 1 МэВ в кремнии. Утверждается, что в продольном распределении протонов внутри кремния ширина на полувисоте не превышает 10%. Это позволяет утверждать, что высокоэнергичные протоны с одинаковой энергией тормозятся практически на одной глубине, формируя область повышенной концентрации водорода.

## **1.2 Условия блистерообразования**

На появление блистеров на поверхности твердых тел при бомбардировке ионами газов оказывает влияние ряд взаимосвязанных процессов, относящихся к мишени, ионам или системе газ-твердое тело. Наиболее важные представлены в Табл. 1. Известно, что блистеринг наблюдается только при бомбардировке ионами газов [7]. Но условия, при которых происходит блистерообразование, отличаются для разных сортов газов. Например, в случае ионов гелия практически всегда наблюдается модификация поверхности металла в виде блистеринга или отслаивания чешуек, для водородного блистеринга нужны специальные условия имплантации, такие как, например, низкая температура и большая плотность потока. Для тяжелых газов (N, Ne, Ar) образование блистеров возможно только при энергиях выше 100 кэВ [14].

При взаимодействии ионов с материалом мишени имеют место процессы, мешающие проникнуть иону на достаточную глубину – это распыление и отражение частиц. Таким образом, следуют естественные условия на возможность образования блистеров:

1. Концентрация имплантированного газа должна быть больше определенной величины  $c_{\text{крит}}$  атом газа на атом мишени, определяемая как максимальная возможная концентрация в отсутствие насыщения:

$$\frac{1 - R_N}{Y} \geq c_{\text{крит}}, \quad (3)$$

где  $R_N$  – коэффициент отражения,  $Y$  – коэффициент распыления. Для многих твердых тел критическая концентрация лежит в диапазоне:  $0,3 \leq c_{\text{крит}} \leq 1$  [15].

Табл. 1 - Классификация факторов, влияющих на процесс блистерообразования.

Связанные с мишенью	Связанные с первичными частицами	Связанные с системой газ-металл
<ul style="list-style-type: none"> <li>• Материал и состав мишени</li> <li>• Метод изготовления и подготовки</li> <li>• Механические свойства</li> <li>• Ориентация кристалла</li> <li>• Шероховатость поверхности</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Сорт первичных частиц</li> <li>• Энергия</li> <li>• Флюенс</li> <li>• Плотность потока</li> <li>• Угол падения</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Растворимость</li> <li>• Коэффициент диффузии</li> <li>• Фазовое состояние</li> </ul>

2. Критическая концентрация должна быть достигнута на достаточной глубине (не менее нескольких десятков нм от поверхности [16]). Так как если  $c_{\text{крит}}$  достигается на поверхности, затем она распространяется вглубь образца,

и блистеринг в таком случае подавляется. Отсюда следует условие на критическую дозу блистерообразования  $\Phi_{кр}$ :

$$Y\Phi_{кр} < R_p N, \quad (4)$$

где  $N$  – число атомов в мишени в единице объема.

Для легких ионов водорода и гелия эти условия выполняются на всем диапазоне энергий, а для тяжелых – Ar, Kr, Xe, обладающих большим коэффициентом распыления, блистеринг наблюдается только при энергиях выше 100 кэВ, когда пробег иона большой, а распыление незначительно.

### *1.2.1 Растворимость и коэффициент диффузии*

Когда ионы газа замедляются в твердом теле до скоростей, соответствующих тепловому равновесию с кристаллической решеткой, на ход дальнейших событий начинают влиять процессы растворимости и диффузии в веществе, характеризуемые соответственными коэффициентами:  $S$  и  $D$ .

Равновесная концентрация газа -  $c$ , образующего истинный раствор в твердом теле, определяется выражением, полученным из закона действующих масс [17]:

$$c = p^\beta S_0 \exp\left(\frac{-Q_s}{kT}\right), \quad (5)$$

где  $S_0$  – константа растворимости;  $Q_s$  – теплота растворения (положительная, если процесс эндотермический);  $\beta$  – стехиометрический показатель ( $\beta=1$  для одноатомного газа,  $\beta=1/2$  для двухатомного газа)

Инертные газы характеризуются очень низкой растворимостью в металлах, так как обладают высокой температурой растворения. Но в случае водорода растворимость сильно зависит от сорта материала. Например, водород очень плохо растворяется или не растворяется вовсе в таких материалах как Be, Zn, Ga, Ge, Cd, In, Sn, Te, Tl, Pb. Для таких веществ как Mg, Al, Si, Cr, Mn, Fe, Co, Cu, Mo, Ag, W, Pt и Au водород растворяется с поглощением теплоты ( $Q_s > 1$ ),

не образуя гидридов, поэтому в пересыщенных системах выделяется в виде пузырьков на поверхности материала. В случае щелочных, щелочноземельных элементов, актинидах Ni и Pb, элементов таблицы Менделеева из подгрупп В<sup>III</sup>, В<sup>IV</sup> и В<sup>V</sup> (Ti, Ta, V, Nb...) растворение носит экзотермический характер ( $Q_s < 0$ ) и наблюдается образование гидридных фаз, сильно меняющих характеристики материала. Обычно на таких материалах водородный блистеринг не наблюдается.

Диффузия атомов газа в твердом теле описывается выражением:

$$D = D_0 \exp\left(-\frac{Q_D}{kT}\right), \quad (6)$$

где  $Q_D$  – энергия активации диффузии,  $D_0$  – константа. Обе величины зависят от перемещения атомов внутри решетки твердого тела. Согласно прямой Аррениуса логарифм коэффициента диффузии  $\ln D$  линейно уменьшается с увеличением обратной температуры  $1/T$ . Таким образом, диффузия в любом материале может быть подавлена при достаточно низкой температуре.

Коэффициент диффузии определяет критическую дозу для образования блистеров. Для некоторых металлов в Табл. 2 [18, 19, 20] приведены характерные значения коэффициента диффузии при разных температурах. По данным Табл. 2 можно предположить, что для Fe, Ta, V и Pb блистеринг будет наблюдаться при больших флюенсах, так как диффузия в этих металлах значительна. В случае алюминия и меди стоит ожидать появления блистеров при более низких флюенсах, так как коэффициент диффузии в них меньше.

Табл. 2 – Коэффициент диффузии для металлов

$T, ^\circ\text{C}$	$D, 10^{-6} \text{ cm}^2/\text{c}$					
	$\alpha\text{-Fe}$	Ta	Cu	V	Al	Pb
20	1	0,8	0,002	4	0,0002	3
100	-	-	0,039	-	-	-
200	-	10	-	1	1	20

### 1.2.2 Температура

Характер деградации поверхности в основном зависит от температуры мишени во время облучения. В работах [21, 22] выделяются четыре температурные области, характеризующиеся различными процессами:

- 1) При температурах, меньших  $0,1-0,2T_{\text{плав}}$ , образуются блистеры с определенным диаметром.
- 2) В интервале температур  $0,1-0,2T_{\text{плав}} < T < 0,4T_{\text{плав}}$ , т.е. более  $200^\circ\text{C}$  в зависимости от материала, сначала происходит вспучивание, а затем отделение чешуек облучаемого материала.
- 3) При дальнейшем нагревании отшелушивание опять сменяется блистерингом.
- 4) При температурах больших, чем  $0,5-0,6T_{\text{плав}}$ , образуется пористая поверхность, не подверженная блистерингу.

### 1.2.3 Плотность потока

Плотность потока пучка бомбардирующих ионов влияет на формирование дефектов на поверхности облучаемого образца двумя способами:

1. С одной стороны, рост плотности потока сопровождается увеличением выделения тепла в имплантируемом слое. Если тепло распространяется

по объему материала недостаточно быстро, температура мишени будет расти.

2. Плотность потока одновременно со скоростью диффузии определяют концентрацию имплантированного газа в приповерхностном слое мишени.

В экспериментах по облучению поликристалла Nb ионами He<sup>+</sup> с энергией 100 кэВ, описанных в работе [23], наблюдался резкий скачок температуры при увеличении плотности тока с 0,3 мА·см<sup>-2</sup> до 1 мА·см<sup>-2</sup>. Этот эффект объяснялся нарушением теплового контакта между крышками блистеров и материалом объема.

В работе [24] было отмечено снижение значения для критического флюенса при увеличении плотности потока ионов He<sup>+</sup> с энергией 15 кэВ, бомбардирующих мишень из Mo. Благодаря потерям имплантированного газа, обусловленным диффузией на поверхность и в объем мишени, требуется большая доза для образования блистеров при уменьшении плотности потока.

#### *1.2.4 Энергия первичных частиц*

Размеры блистеров зависят преимущественно от температуры мишени и энергии ионов. Характерная толщина крышек блистеров и отшелушенного слоя определяется средней длиной пробега ионов в облучаемом веществе, которая в свою очередь зависит от энергии исходной частицы. Соответственно, в случае частиц с большей энергией отслоенный слой будет больше. Этот факт находит подтверждение в области высоких энергий, но в диапазоне энергий <10кэВ толщина отслаиваемого слоя значительно больше среднего пробега ионов [25]. Такое расхождение в области низких энергий может быть объяснено локальными неоднородностями облучаемого материала.

Диаметр возникающих блистеров в первом приближении линейно растет с увеличением энергии первичных ионов [26]. Средний диаметр блистеров ( $d$ )

относится к толщине крышек ( $t$ ) как  $d \sim t^\nu$ , где  $\nu$  принимает значения  $0,85 \leq \nu \leq 1,5$  [6], при этом коэффициент  $\nu$  зависит от механических свойств материала мишени.

Также от энергии зависит критическая доза блистерообразования. В работе [27] экспериментально показано, что критический флюенс зависит от энергии как  $E^{1/2}$ . Качественно такая зависимость объясняется тем, что для достижения критической концентрации газа при высокой энергии необходимы большие флюенсы, поскольку возрастает ширина распределения пробегов ионов.

### *1.2.5 Кристаллическая ориентация мишени*

Во многих экспериментальных работах показано, что существует зависимость размеров блистеров, формы и плотности покрытия поверхности от ориентации кристаллической решетки мишени. Например, в работе [28] описывается эксперимент по водородной бомбардировке алюминия с зернами различной кристаллической ориентации. Так для зерен, ориентация которых близка к  $\langle 111 \rangle$  и  $\langle 100 \rangle$ , наблюдалась наименьшая концентрация блистеров на поверхности. Авторами отмечается, что концентрация блистеров зависит от количества захваченного газа. Предполагается, что вдоль кристаллических связей концентрация внедренного газа больше, это объясняется величиной пробега, которая больше при таком прохождении (например, вдоль оси  $\langle 110 \rangle$  гранецентрированной кубической решетки).

В работе [29] ионами гелия облучали монокристалл ниобия. Авторами была обнаружена зависимость размеров блистеров и толщины стенок от направления бомбардировки относительно кристаллической структуры. Например, в случае, когда пучок с энергией 4 кэВ направлен вдоль оси  $\langle 100 \rangle$ , характерный размер блистера в 2 раза больше, чем в случае произвольного направления, а толщина стенки больше на 5%. При энергии пучка 15 кэВ увеличение диаметра составляет  $\sim 30\%$ , толщины – 20%. Была также обнаружена зависимость критической дозы блистерообразования, которая

оказалось выше для плотноупакованных направлений при меньшей концентрации блистеров.

Все описанные выше зависимости связаны с пробегом ионов в облучаемом веществе, который зависит от структуры кристаллической решетки, но пока не существует целостной модели, описывающей это явление.

#### *1.2.6 Влияние предварительной обработки*

Значительное влияние на процесс блистерообразования оказывает поверхностная структура мишени, возникающая в результате изготовления и обработки материалов мишени. В образцах с разными способами и характером обработки наблюдаются различия в упругих и пластических свойствах и способности захватывать газ. Это вызвано разным характером возникающих в ходе обработки дефектов и механических напряжений.

Существует общая закономерность, что увеличение совершенства кристаллической структуры мишени приводит к увеличению размеров блистеров и усилению процесса отслаивания верхнего слоя. Это было экспериментально подтверждено в экспериментах с V и Nb, которые были подвергнуты гелиевой бомбардировке [30]. Любое нарушение поверхностной структуры позволяет снизить эффект блистеринга и отслаивания чешуек. Это достигается методами пескоструйной или абразивной обработки, химическим травлением, нанесением царапин или осаждением паров, формирующих шероховатую структуру поверхности. В работе [31] сравнивались два образца Mo: электрополированный и обработанный наждачной бумагой (№1200 и №400). При бомбардировке ионами гелия с энергией 100 кэВ на электрополированном образце появлялись блистеры и происходило расслаивание поверхностного слоя. В то время как на втором образце удалось полностью подавить оба этих явления.

Объяснение этим различиям заключается в невозможности образования достаточного слоя газа под шероховатой поверхностью. Для этого



поверхностные дефекты должны иметь масштаб длины сравнимый с характерным размером блистеров. Например, если на поверхности молибдена создать периодическую структуру канавок определенной толщины, образование блистеров будет происходить, но их размеры будут меньше чем расстояние между канавками. Тогда как на молибдене без механических повреждений наблюдаются блистеры и больших размеров при прочих равных условиях [32].

### *1.2.7 Угол падения*

При увеличении угла падения усиливается отражение первичных ионов, что приводит уменьшению размеров блистеров и толщины отслаивания. Например, при исследовании сплава CrNi было показано [6], что толщина крышек ( $t$ ) блистеров зависит от угла ( $\theta$ ) как  $t \propto \cos \theta$ , а диаметр блистеров  $d \propto \cos^{\frac{3}{2}} \theta$ .

## Глава 2. Постановка эксперимента

Эксперименты по наблюдению блистеринга были проведены на ускорителе-тандеме с вакуумной изоляцией. Ускоритель позволяет получать протонный пучок с энергией 2 МэВ, поперечным размером 1 см и с током до 5 мА. На Рис. 2 изображена фотография исследовательской установки.

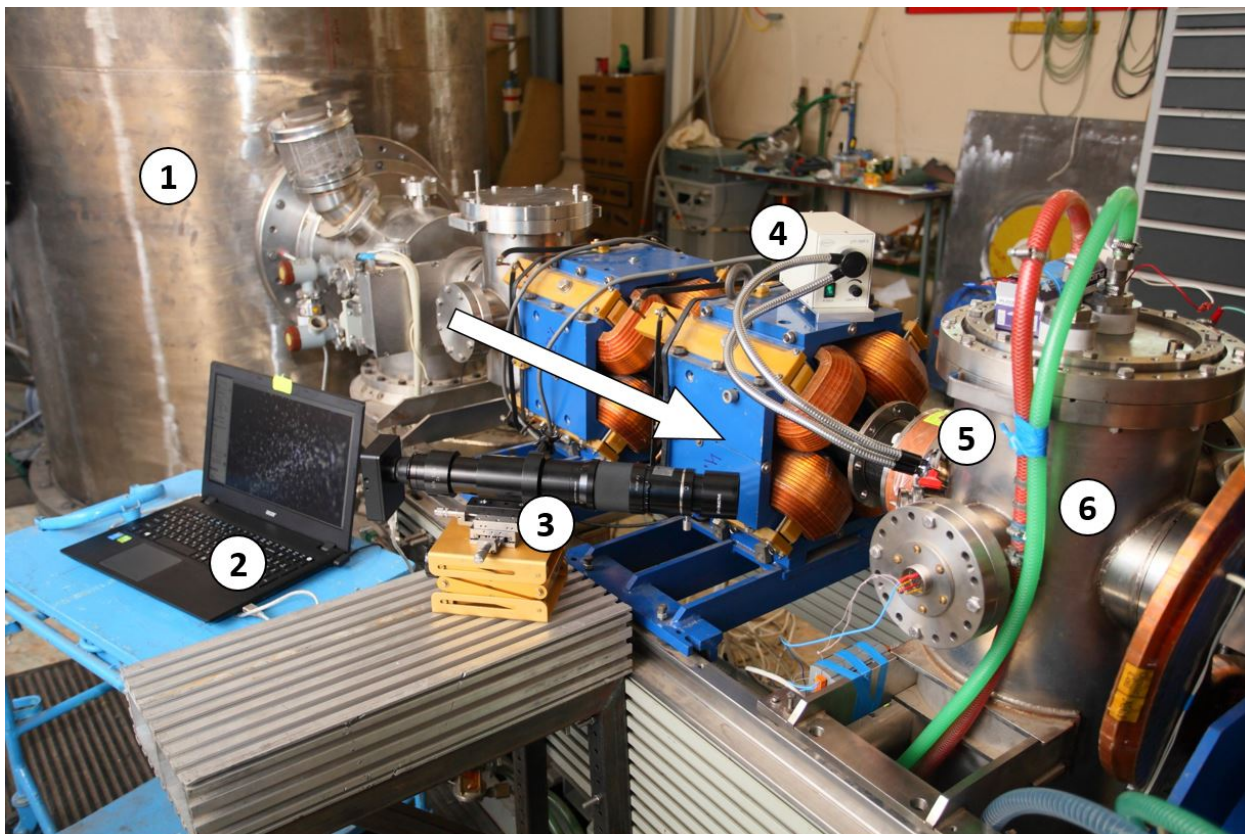
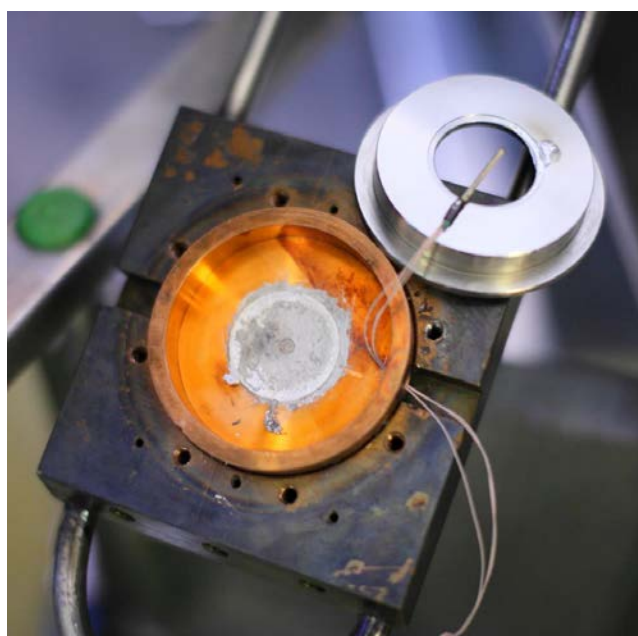


Рис. 2. Экспериментальная установка: 1 – ускоритель-тандем с вакуумной изоляцией, 2 – ПК, 3 - дистанционный микроскоп с CCD-камерой, 4 – подсветка, 5 – окошко из плавленного кварца, 6 – диагностическая вакуумная камера. Стрелка схематически показывает направление распространения протонного пучка с энергией 2 МэВ.

В высокоэнергетический тракт транспортировки пучка на оси был размещен исследуемый образец, представляющий собой диск диаметром 30 мм и толщиной 3 мм. В качестве теплопроводящего материала при соединении образца с теплоотводящей поверхностью использовался сплав индия с галлием. В первой серии экспериментов [34] для отвода тепла использовался узел охлаждения графитовой мишени (Рис. 3а). Во второй

серии экспериментов теплоотводящая поверхность была выполнена в виде медной пластины с подачей охлаждения через резьбовые стержни для завихрения потока воды (Рис. 3б). Конструкция охлаждающей поверхности из второй серии экспериментов оказалась более эффективной и позволила при токе протонов порядка 0,5 мА поддерживать температуру образцов ниже температуры плавления лития (182 °С), что соответствует условиям эксплуатации нейтроногенерирующей мишени.



(а)



(б)

Рис. 3. Фотографии теплоотводящих поверхностей, использованных в первой (а) и второй (б) серии экспериментов.

Для измерения средней температуры образцов применялись предварительно откалиброванные платиновые терморезисторы Pt100 (ЧЭПТ-1), которые были размещены внутри образца через отверстие диаметром 1,5 мм на глубине 1,5 мм от поверхности. Точность измерения составляет 1°С, погрешность, вносимая сопротивлением проводов, учитывается трёхпроводной схемой подключения. Измерение температуры терморезисторами Pt100 (ЧЭПТ-1), расположенными по кругу диафрагмы, позволяет контролировать отклонение пучка протонов от оси установки. Для измерения температуры поверхности образца применялся пирометр Optris СТ

Laser 3ML SF (Optris, GmbH, Германия), наблюдение велось через кварцевое окно, во второй серии экспериментов наблюдение велось инфракрасной камерой FLIR T650SC через окно из фтористого бария. Пирометр и инфракрасная камера были откалиброваны в диапазоне от 100 до 250 °С, калибровка осуществлялась путем нагрева образцов подачей горячего воздуха вместо воды в охлаждающие каналы, температура измерялась терморезисторами, вставленными в образец. Следует учесть, что пирометр измеряет температуру в области диаметром 19 мм. Так как размер точки превышает размер пучка, следовательно показания пирометра занижены. В 50 мм перед образцом установлено супрессорное кольцо, на которое подается отрицательное напряжение 300 В для измерения протонного тока на образце с помощью омического делителя, при этом на образец подается 100 В положительного напряжения. Перед диагностической камерой установлена медная охлаждаемая диафрагма с коллимационным отверстием 26 мм. В диафрагме равномерно размещены четыре терморезистора Pt100 (ЧЭПТ-1), показания которых позволяют контролировать положение пучка протонов.

Наблюдение за поверхностью образцов производилось через окно из плавленого кварца (Рис. 2 - 5) с помощью CCD-камеры с дистанционным микроскопом Infinity K2 (DistaMax™, USA) (Рис. 2 - 3), установленной под углом 42° к нормали поверхности образца. Расстояние между образцом и первой линзой микроскопа составляло 330 мм. Микроскоп был откалиброван с помощью проволоки толщиной 100 мкм, разрешение получаемого изображения 260 пикс/мм. Через дополнительное окно из плавленого кварца образцы подсвечивались галогеновой лампой LFP-10WP-R (Shibuya, Japan) с мощностью 10 Вт (Рис. 2 - 4). Для сбора и сохранения изображений с камеры, а также для отображения состояния мишени в реальном времени использовался ПК (Рис. 2 - 2), установленный рядом с CCD-камерой.

После проведения экспериментов образцы были подвергнуты дополнительному анализу. Кристаллическая структура образцов была

исследована с помощью рентгеновского дифрактометра SHIMADZU XRD-7000 (Shimadzu Co., Japan). Использование лазерного сканирующего 3D микроскопа KEYENCE VK-X200 (Keyence Co., USA) и электронных микроскопов Jeol JCM-5700 и FIB-SEM Helios G3 UC (FEI, USA) позволило детально изучить деградацию поверхности после облучения.

## Глава 3. Экспериментальные результаты

### 3.1 Определение размера протонного пучка

Поперечный размер протонного пучка был определен с помощью трех методов:

1. В первом случае использовался образец из титана, который был подвергнут воздействию протонного пучка без обеспечения приемлемого теплового контакта с теплоотводящей поверхностью. После непродолжительного времени на поверхности образца образовалось отверстие с диаметром 11 мм (Рис. 4).



Рис. 4. Отверстие на образце из титана.

2. Во втором методе титановый образец облучался в условиях качественного теплосъема, который предотвращал прожигание поверхности и распыление титана. При взаимодействии протонов с титаном образуется радиоактивный изотоп ванадия с периодом полураспада 16 дней [33]. Таким образом, в области осаждения протонного пучка в материале образца накапливается радиоактивный изотоп ванадия. Размер этой области был определен с помощью гамма-спектрометрического комплекса с сцинтилляционным детектором на основе кристалла NaI и свинцовой защиты с коллимационным отверстием. Через час после проведения эксперимента образец помещался перед коллимационным отверстием

сцинтилляционного детектора. В результате  $\beta^+$ -распада изотопа ванадия испускаются гамма-кванты с энергией 511 и 945 кэВ [33]. Увеличение коллимационного отверстия от 8 до 20 мм с шагом 2 мм позволило определить области накопления ванадия, что свидетельствует о попадании пучка в эту область. Диаметр пучка, измеренный таким способом, составил  $12 \pm 1$  мм.

3. Третий метод был реализован во время второй серии экспериментов. Профиль пучка был определен по распространению границы области, покрытой блистерами, со временем облучения. На Рис. 5 представлен результат обработки изображений динамики блистерообразования для крупнозернистой меди с чистотой 99,99996 %, где указаны границы областей с равным набранным интегральным током (флюенсом). Видно, что протонный пучок, осаждаемый на образец, несимметричный: имеет форму эллипса и максимальная плотность тока приходится на область внутри верхней полудуги. С точностью 5% размер протонного пучка на полувысоте в горизонтальном направлении составил 8,9 мм и 12,4 мм в вертикальном направлении. Эффективная область пучка, определенная как отношение между током и максимальной плотностью тока равна  $75 \pm 7$  мм<sup>2</sup>. Принимая размер пучка равным 75 мм<sup>2</sup>, мы получаем что 1 мА·ч интегрального тока соответствует флюенсу  $3 \pm 0,3 \cdot 10^{19}$  см<sup>-2</sup>. Таким образом, в первой серии экспериментов образцы были облучены до флюенса  $5,4 \cdot 10^{19}$  см<sup>-2</sup>.

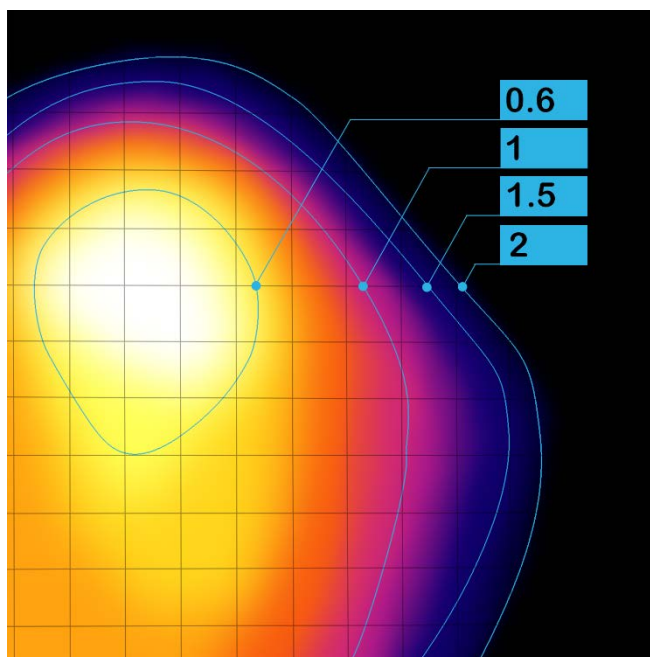


Рис. 5. Границы области, покрытой блистерами, в зависимости от флюенса протонов (в  $10^{19} \text{ см}^{-2}$ ). Шаг сетки 1 мм.

### 3.2 Облучение меди при высокой температуре

В первой серии экспериментов были исследованы 3 образца меди, данные о которых представлены в Табл. 3.

Табл. 3 – Исследуемые образцы меди.

Материал	Стандарт
М0 Медь	ГОСТ 859-2014, Россия
Мелкозернистая медь с чистотой 99,996%	OFC-1 JIS H3150 C1011, SH Copper Products Co., Ltd, Япония
Крупнозернистая медь с чистотой 99,99996%	High Purity Copper, Mitsubishi Materials Co., Япония

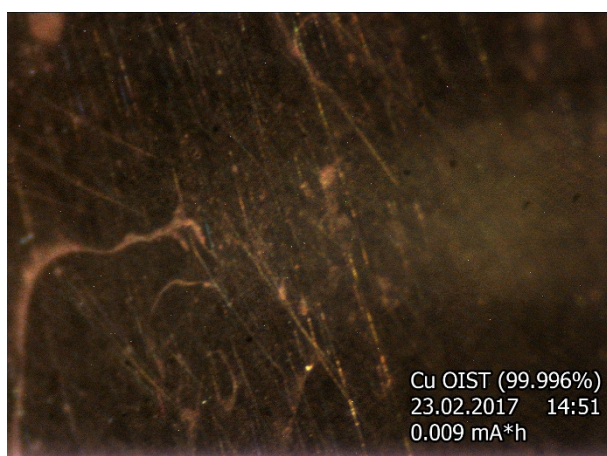
Перед проведением экспериментов все образцы были подвергнуты алмазной полировке для достижения зеркальной поверхности оптического качества. Медные образцы бомбардировались протонами с энергией 2 МэВ и током до 0,6 мА в течении 3 часов, температура поверхности мишеней,



измеряемая пирометром, достигала  $263 \pm 15^\circ\text{C}$ . Образец, изготовленный из тантала, облучался пучком протонов той же энергии с током 0,45 мА в течении 4 часов. Продолжительность экспериментов продиктована условием на одинаковый интегральный ток для всех образцов, он составил  $1,81 \pm 0,03 \text{ мА}\cdot\text{ч}$  ( $5,4 \pm 0,1 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$ ).

Во время облучения образцов из меди М0 ГОСТ 859-2014 и мелкозернистой с чистотой 99,996% на поверхности наблюдались схожие явления: при флюенсе  $1,5 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$  появились первые блистеры, при флюенсе  $5,4 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$  вся поверхность была плотно покрыта блистерами. На Рис. 6 изображена динамика блистерообразования. Размер изображения на Рис. 6 и Рис. 8 соответствует размеру области образца площадью 4x9 мм.

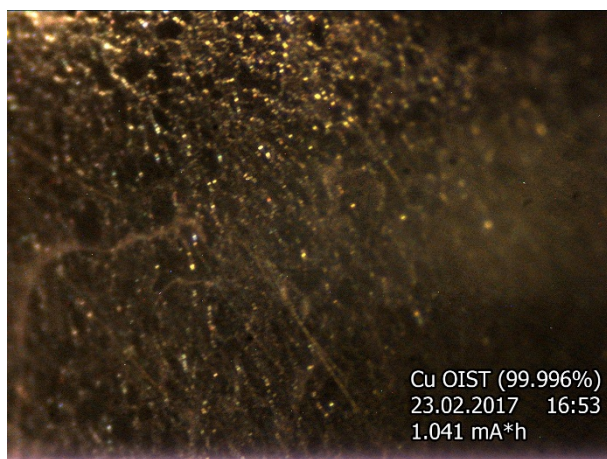
На Рис. 7 приведены изображения облученной поверхности образца из меди М0, полученные с помощью лазерного микроскопа. Размеры блистеров варьируются от 50 до 150 мкм, их средняя высота  $\sim 10$  мкм. Для некоторых блистеров максимальная высота достигается в центре (Рис. 7д-е), а для некоторых на периферии (Рис. 7в-г).



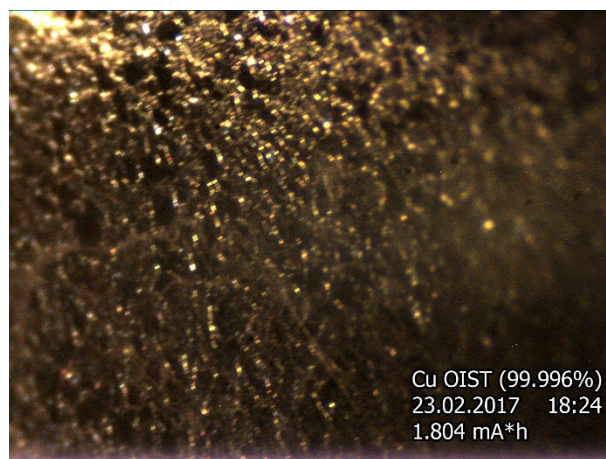
(a)



(б)

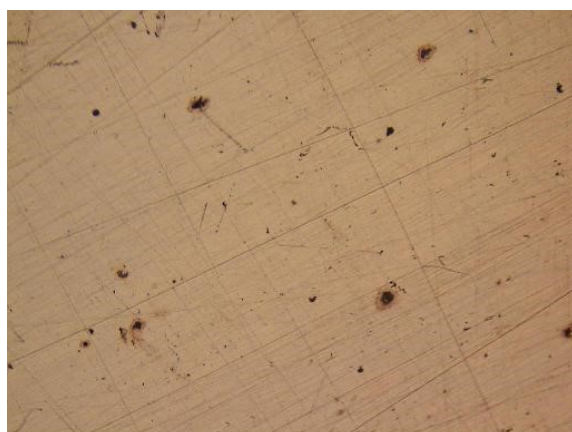


(B)

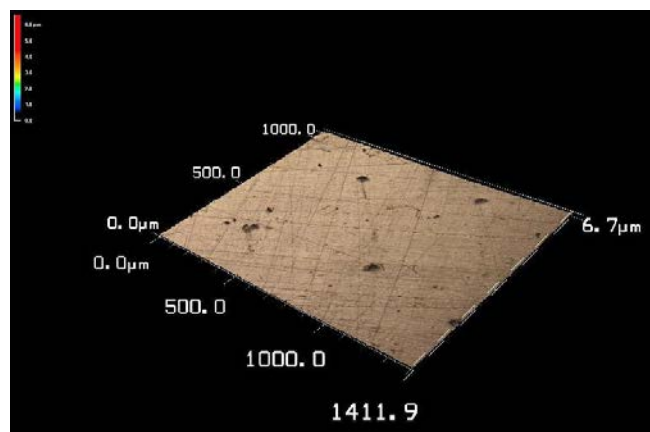


(Gamma)

Рис. 6. Динамика блистерообразования на поверхности образца мелкозернистой меди с чистотой 99,996% под воздействием пучка протонов с энергией 2 МэВ при флюенсе: а)  $0,027 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$ ; б)  $1,4 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$ ; в)  $3,1 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$ ; а)  $5,4 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$ .



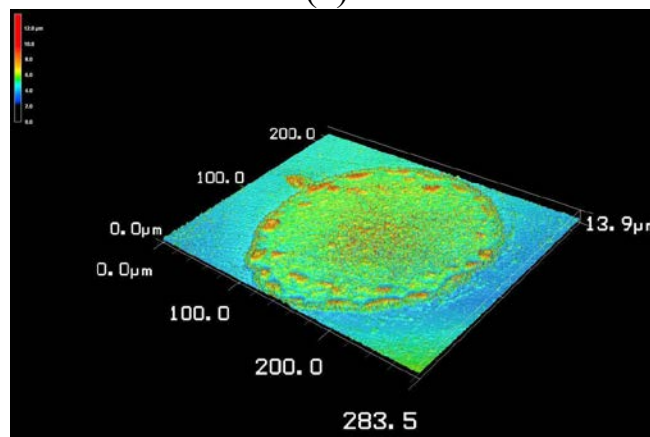
(a)



(б)



(B)



(Gamma)

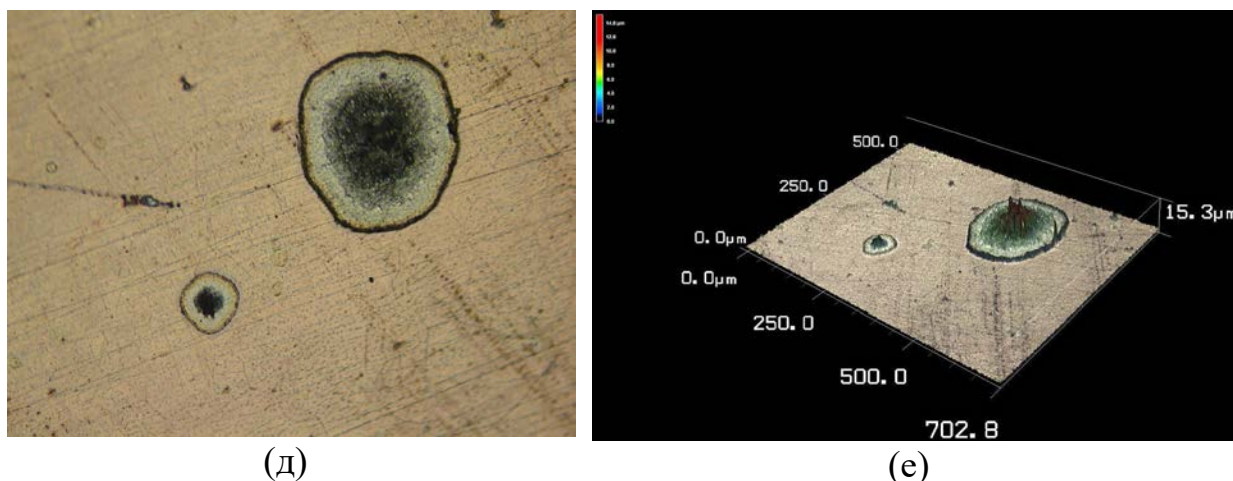


Рис. 7. Изображения поверхности образца меди М0, полученные с помощью лазерного микроскопа, и результат их обработки: а, б – до облучения; в-е – после облучения.

На образце из крупнозернистой меди с чистотой 99,99996% не наблюдалось образование блистеров в течении всего процесса облучения. Однако при флюенсе  $3 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$  (Рис. 8б) на поверхности появились трещины. Динамика блистерообразования изображена на Рис. 8, на Рис. 9 приведены результаты сканирования лазерным микроскопом.



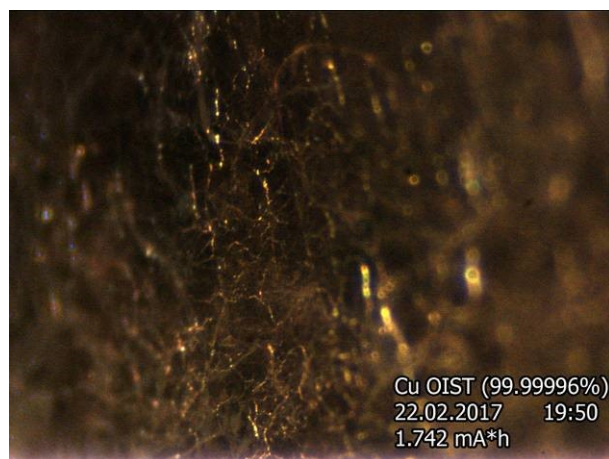
(а)



(б)

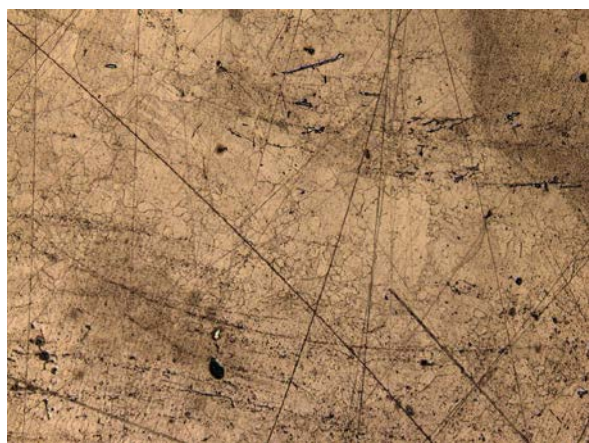


(б)

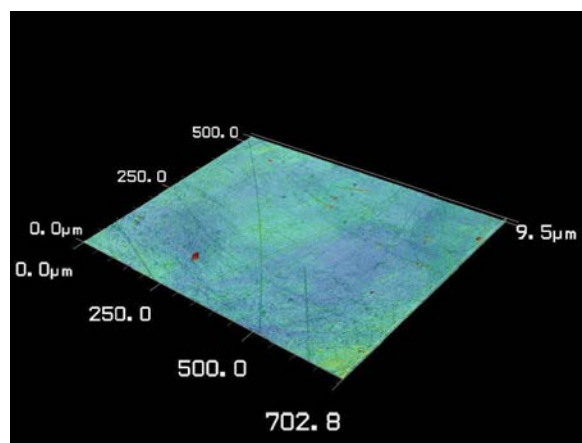


(г)

Рис. 8 Динамика блистерообразования на поверхности образца крупнозернистой меди с чистотой 99,99996% под воздействием пучка протонов с энергией 2 МэВ при флюенсе: а)  $0,6 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$ ; б)  $2,7 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$ ; в)  $3,8 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$ ; г)  $5,2 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$ .



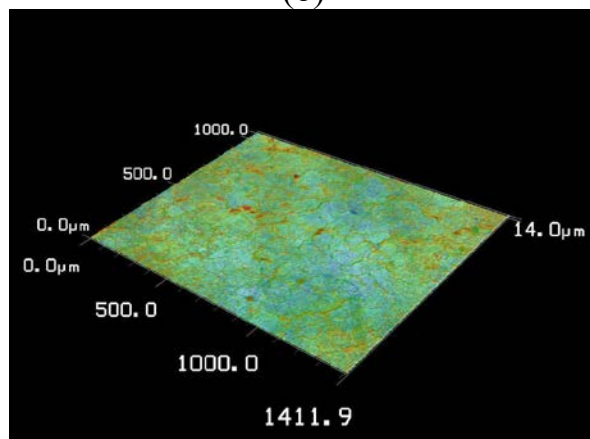
(а)



(б)



(в)



(г)

Рис. 9. Изображения поверхности образца крупнозернистой меди с чистотой 99,99996%, полученные с помощью лазерного микроскопа, и результат их обработки: а, б – до облучения; в, г – после облучения.

### 3.3 Облучение меди при низкой температуре

Во второй серии экспериментов облучении образцов происходило с использованием новой теплоотводящей поверхности, позволившей удерживать температуру мишеней ниже температуры плавления лития, что критично в отношении нейтроногенерирующей мишени. Также удалось добиться повышения качества изображений с CCD-камеры путем ее настройки (было уменьшено отверстие диафрагмы, экспозиция увеличена до 7 с, снижена чувствительность матрицы), подсветка образцов из дополнительного окна диагностической камеры была перемещена в основное, были подавлены вибрации поверхности, на которой фиксируется камера. Температура образцов во второй серии экспериментов была измерена инфракрасной камерой FLIR T650SC.

#### 3.3.1 Мелкозернистая медь 99,996%

Образец мелкозернистой меди с чистотой 99,996% (OFC-1 JIS H3150 C1011, SH Copper Products Co., Ltd, Japan) был облучен до флюенса  $5,6 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$  при условиях: ток протонного пучка  $524 \pm 28 \text{ мА}$ ; температура поверхности, измеренная пирометром,  $82 \pm 16 \text{ }^\circ\text{C}$ ; максимальная температура, измеренная инфракрасной камерой  $152^\circ\text{C}$ . Процесс образования блистеров проиллюстрирован на Рис. 10. Размеры изображений на Рис. 10 соответствуют области на образце площадью  $9 \times 4 \text{ мм}$ . Модификации поверхности, возникшие сразу после начала облучения, могут быть объяснены нагреванием металла в вакууме (Рис. 10б). Порог блистеринга для исследуемого образца составил  $0,45 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$ .

Для определения характерного размера блистеров темные области изображений, полученных с CCD-камеры, были заключены в прямоугольники. На Рис. 11 изображена гистограмма распределения размеров прямоугольников, которые соответствуют характерному размеру блистеров. Таким образом, диаметр блистеров составил  $40 \pm 20 \text{ мкм}$ .

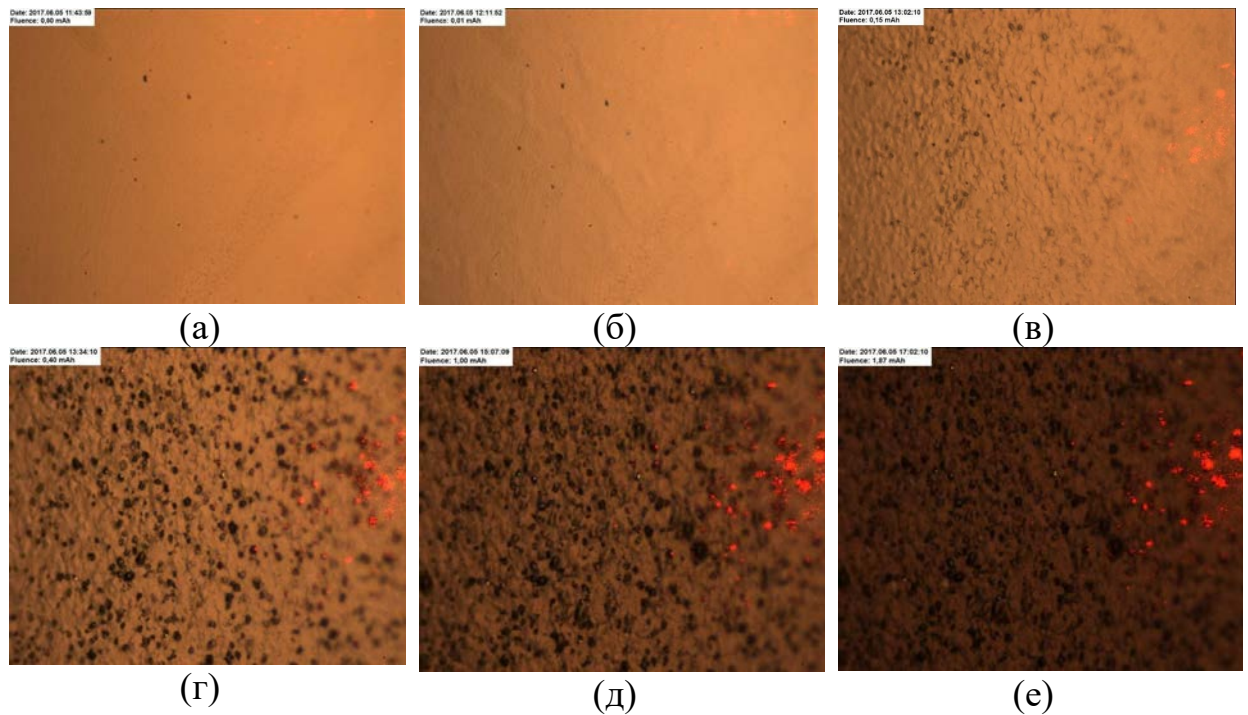


Рис. 10. Динамика блистерообразования на поверхности образца мелкозернистой меди с чистотой 99,996% под воздействием пучка протонов с энергией 2 МэВ при флюенсе: а)  $0 \text{ см}^{-2}$ ; б)  $0,03 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$ ; в)  $0,45 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$ ; г)  $1,2 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$ ; д)  $3 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$ ; е)  $5,6 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$ .

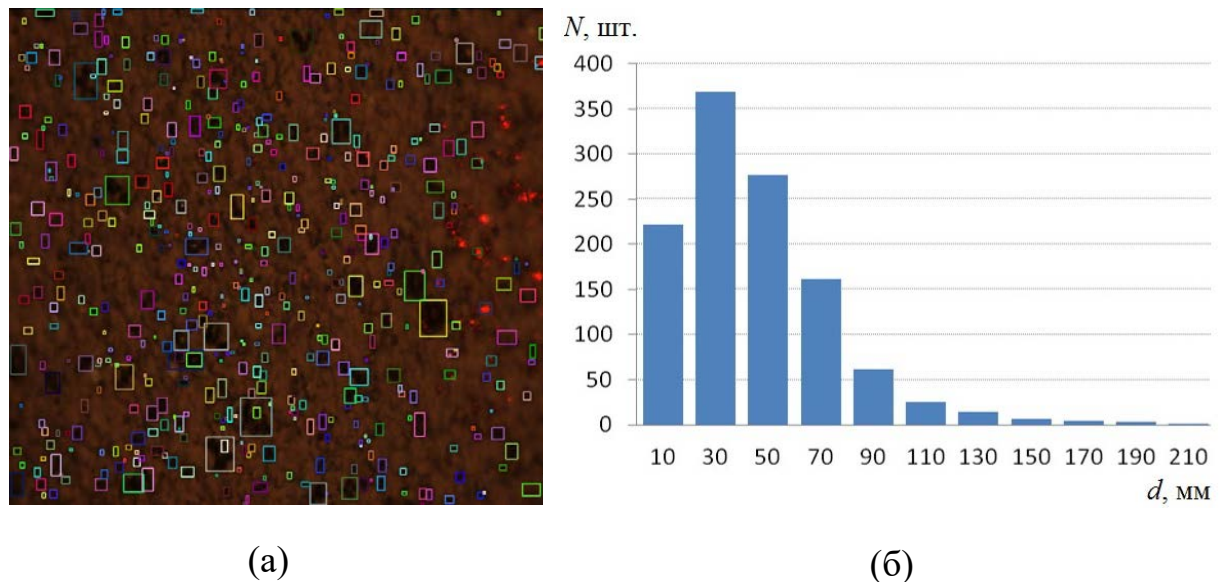


Рис. 11. Результат обработки изображения CCD-камеры: а), гистограмма распределения размеров блистеров – б) на образце мелкозернистой меди с чистотой 99,996%.

### 3.3.2 Крупнозернистая медь 99,99996%

Образец крупнозернистой меди с чистотой 99,99996 % (Mitsubishi Materials Co., Japan) был облучен до флюенса  $5,6 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$  при условиях: ток протонного пучка  $526 \pm 31 \text{ мА}$ ; температура поверхности, измеренная пирометром,  $83 \pm 8 \text{ }^\circ\text{C}$ ; максимальная температура, измеренная инфракрасной камерой  $161^\circ\text{C}$ .

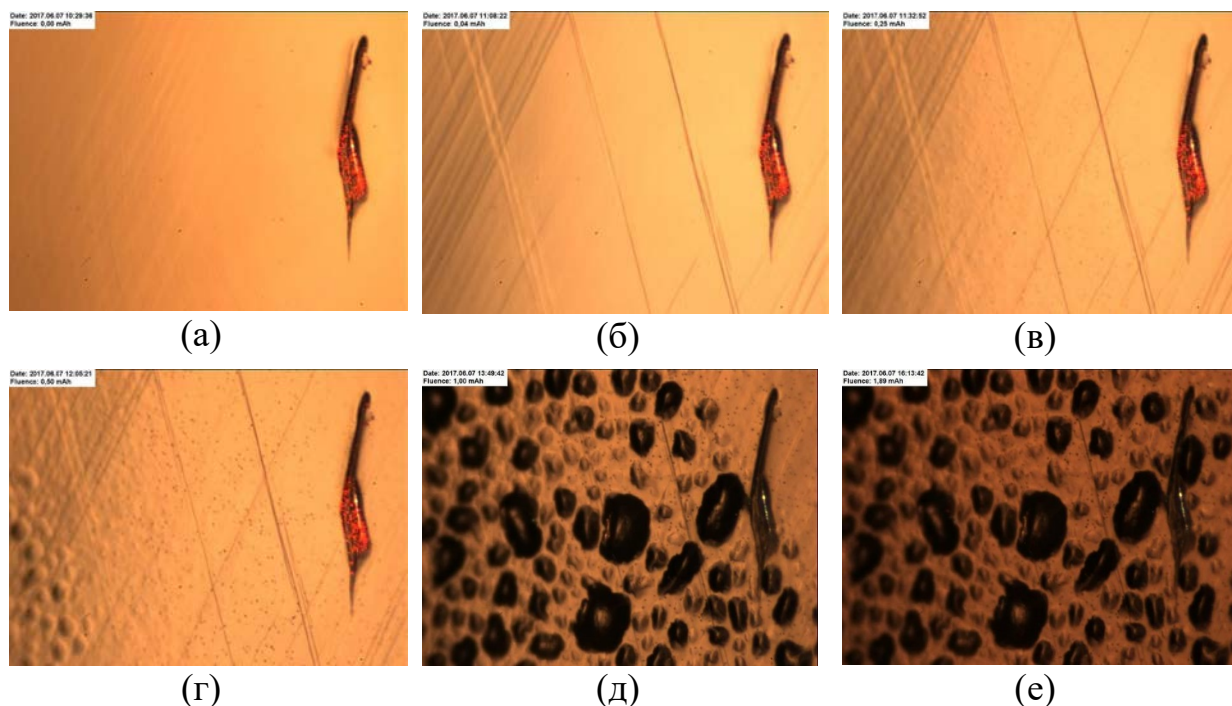


Рис. 12. Динамика блистерообразования на поверхности образца крупнозернистой меди с чистотой 99,99996% под воздействием пучка протонов с энергией 2 МэВ при флюенсе: а)  $0 \text{ см}^{-2}$ ; б)  $0,12 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$ ; в)  $0,75 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$ ; г)  $1,5 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$ ; д)  $3 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$ ; е)  $5,8 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$ .

Рис. 12 иллюстрирует процесс блистерообразования (объект с правой стороны изображений – отметка для позиционирования образца). Сразу после начала облучения образец покрылся полосами, которые связаны с нагреванием металла в вакууме. При флюенсе  $1,5 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$  поверхность начала покрываться блистерами с левого нижнего угла области, фиксируемой камерой. Такое распространение объясняется расположением центра протонного пучка, который в данном случае находился с левого края изображения.

Во время облучения изображения с камеры сохранялись каждые 30 с. Облучение длилось в течении 4 часов 38 минут, соответственно было получено 457 изображений. На Рис. 13 изображен график зависимости изменения яркости относительного первого изображения -  $B$  к набранному флюенсу, где значения  $B$  определяются как

$$B_j = \sum_{i=1}^N \frac{|B_{1,i} - B_{j,i}|}{255 \cdot N}, \quad (7)$$

где  $B_{j,i}$  – яркость  $i$ -ого пикселя (от черного – 0 до белого – 255) для  $j$ -ого изображения ( $j$  принимает значение от 1 до 457),  $N$  – количество пикселей на изображении (здесь  $N=1447680$ ). На графике можно увидеть резкий скачок в самом начале облучения, который связан с появлением полос от нагрева. График начинает расти при интегральном токе 0,5 мА·ч, что соответствует флюенсу  $1,5 \cdot 10^{19}$  см<sup>-2</sup>, это возрастание ассоциировано с появлением блистеров.

Размер блистеров был определен методом, описанным выше для образца мелкозернистой меди с чистотой 99,996%. Для образца с чистотой 99,99996 % он составил  $170 \pm 50$  мкм.

Таким образом, порог блистерообразования для крупнозернистой меди с чистотой 99,99996%, равный  $1,5 \cdot 10^{19}$  см<sup>-2</sup> в 3,3 раза выше, чем для мелкозернистой меди с чистотой 99,996%. Также наблюдались блистеры больших размеров: в случае крупнозернистой меди с чистотой 99,99996% они лежали в диапазоне  $170 \pm 50$  мкм, для мелкозернистой меди с чистотой 99,996% -  $40 \pm 20$  мкм.



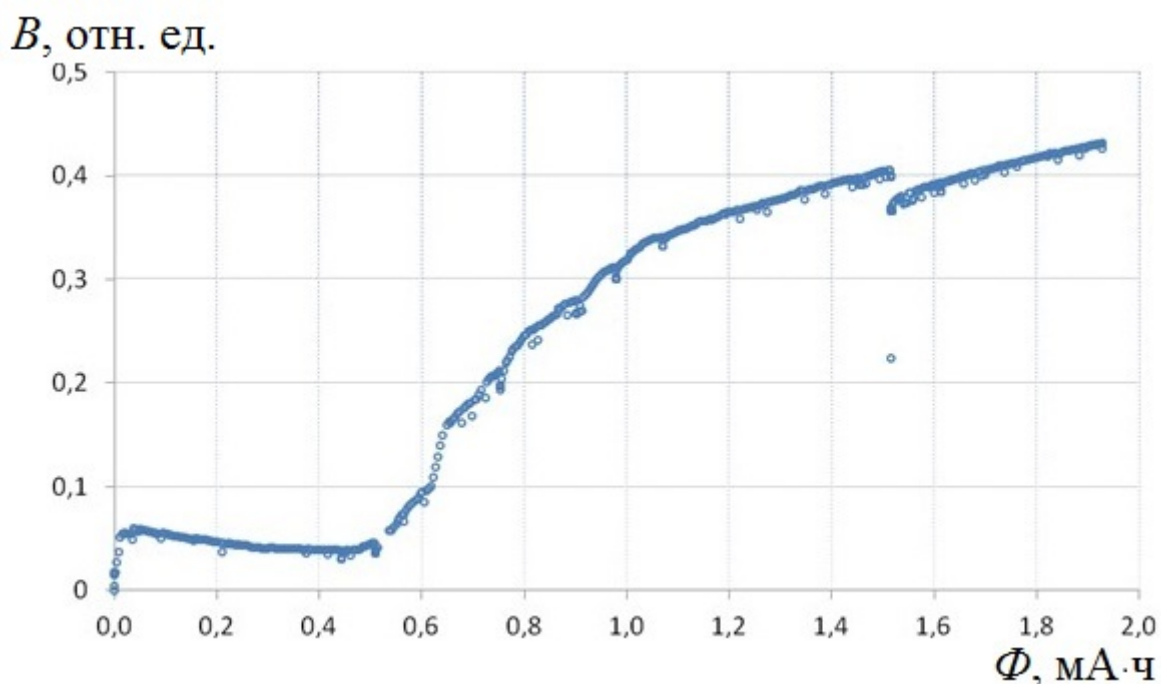


Рис. 13 Изменение яркости изображения -  $B$  относительно интегрального тока протонного пучка -  $\Phi$ .

После облучения поверхность образца крупнозернистой меди с чистотой 99,99996 % была исследована с помощью электронного микроскопа FIB-SEM Helios G3 UC (FEI, USA) (Рис. 14). Было обнаружено, что на поверхности образовались два типа блистеров: с характерным размером  $\sim 100$  мкм (Рис. 14б) и с размером  $\sim 8$  мкм (Рис. 14в-г). При исследовании внутренней структуры блистеров оказалось, что для больших блистеров характерно образование полости глубиной 10-20 мкм, в то время как толщина металла над полостью маленьких блистеров составляет около 2 мкм. Разница в размерах и глубине полости этих двух типов блистеров позволяет предполагать, что причина их возникновения может быть разной. Так образование крупных блистеров с глубиной полости порядка 10-20 мкм можно ассоциировать с воздействием протонного пучка, так как глубина проникновения протонов с энергией 2 МэВ в медь составляет 19 мкм, что соотносится с глубиной полости. Можно предположить, что причиной образования мелких блистеров были положительно заряженные ионы аргона, которые возникают при обдирке ионного пучка в газовой аргоновой мишени внутри высоковольтного

электрода ускорителя. Ионы аргона ускорены до энергии 1 МэВ, они обладают большей массой чем протоны, соответственно их путь торможения в меди существенно меньше, чем для протонов. Хотя поток ионов аргона в сравнении с потоком протонов мал, образование мелких блистеров начинается при значительно меньшем флюенсе благодаря меньшей глубине проникновения.

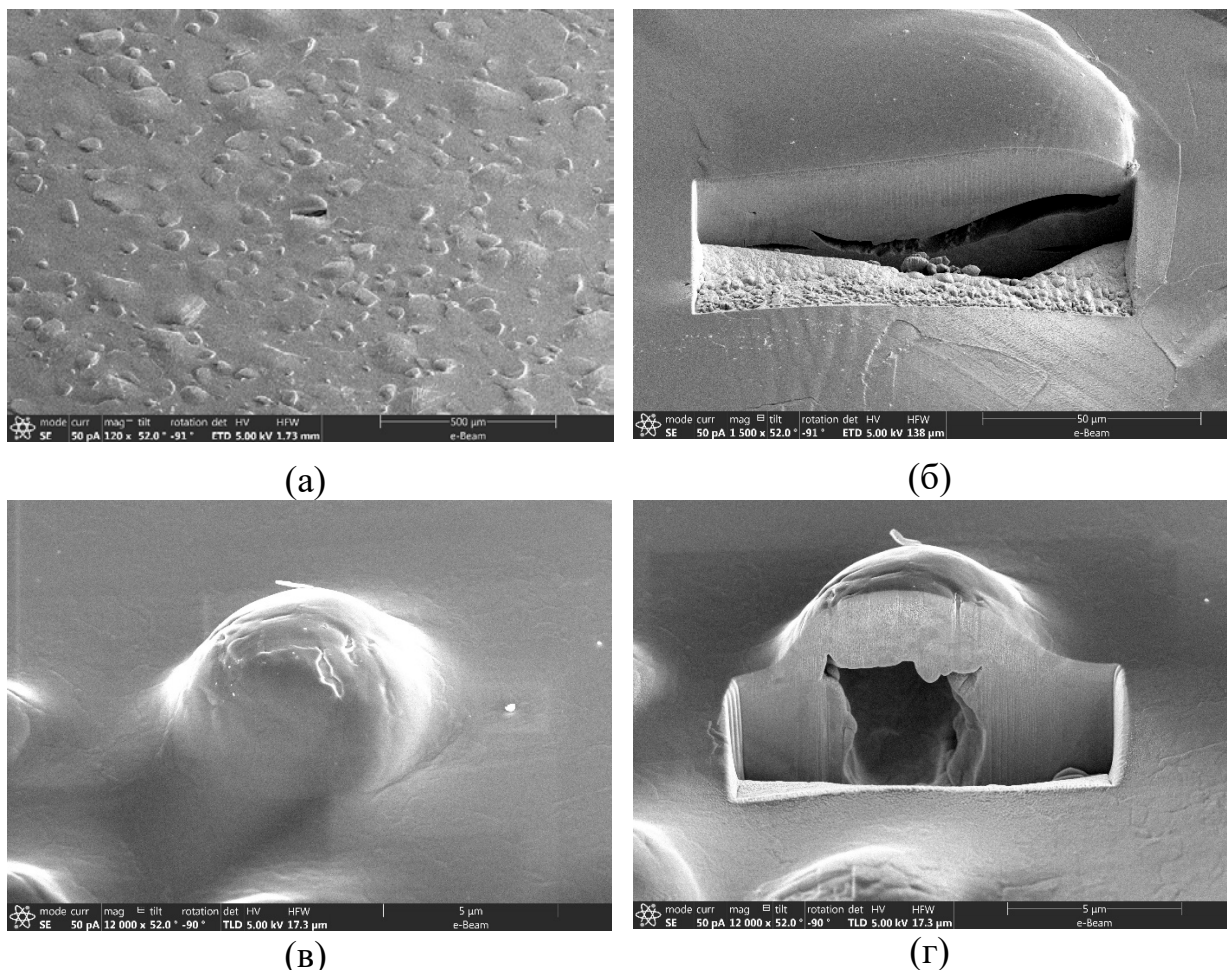


Рис. 14. Изображения облученной поверхности крупнозернистой меди с чистотой 99,99996%, полученные с помощью электронного микроскопа.

Для проверки влияния кристаллической ориентации на порог блистерообразования были исследованы образцы с преимущественной ориентацией кристаллитов в направлении [200] и [111]. Описанный выше образец крупнозернистой меди обладает ориентацией [200]. В случае ориентации кристаллов в направлении [111] атомы меди более плотно заполняют кристаллографическую плоскость. Согласно описанным в теоретической части предположениям блистеринг в случае более плотной

заселенности атомов должен наблюдаться при меньшем флюенсе при прочих равных условиях.

Во время облучения образца крупнозернистой меди с чистотой 99,99996 % и ориентацией кристаллов в направлении [111] был убран объектив CF-2 дистанционного микроскопа, что позволило вести наблюдение за поверхностью, в четыре раза большей, и увидеть всю область, покрытую блистерами. Границы распространения блистеринга можно соотнести с областью, на которую попадает протонный пучок, что и было проделано как один из методов определения размера пучка. Также CCD камера была повернута на 90° относительно оптической оси. Таким образом, размеры изображений динамики блистерообразования на Рис. 15 соответствуют размерам поверхности образца 12x12 мм.

Начало образования блистеров наблюдалось при флюенсе  $1,5 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$ , таком же как в случае меди с кристаллической ориентацией [111]. Отсюда можно сделать вывод, что кристаллическая ориентация не влияет на порог блистерообразования.

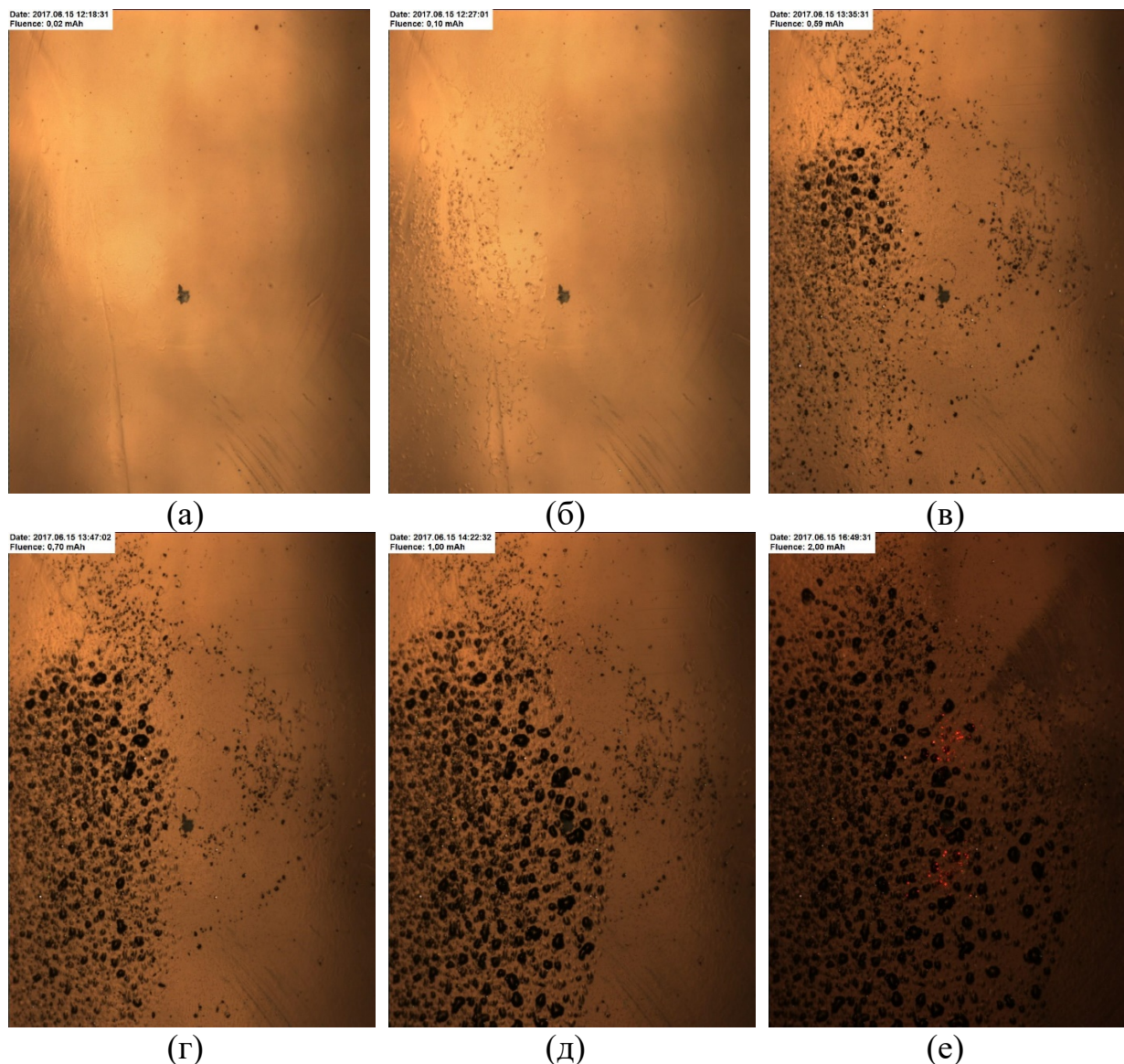


Рис. 15. Динамика блистерообразования на поверхности образца крупнозернистой меди с чистотой 99,99996% под воздействием пучка протонов с энергией 2 МэВ при флюенсе: а)  $0,06 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$ ; б)  $0,3 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$ ; в)  $1,77 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$ ; г)  $2,1 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$ ; д)  $3 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$ ; е)  $6 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$ .

Следует отметить еще одну особенность возникновения блистеров: когда достигается максимальная плотность блистеров на облучаемой поверхности, дальнейшее облучение не приводит ни к каким модификациям поверхности. Так увеличение флюенса в четыре раза с  $1,5 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$  до  $6 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$  не изменило уже образовавшегося рельефа поверхности. Это можно объяснить возникающими во время образования блистеров трещинами, которые

позволяют выходить водороду из полости блистера, препятствуя дальнейшей деградации поверхности.

Размеры блистеров были определены по методике, примененной в других экспериментах и описанной выше. Для крупнозернистой меди с чистотой 99,99996 % и кристаллической ориентацией [200] наблюдались блистеры с характерными размерами  $170 \pm 50$  мкм, такими же как в экспериментах с медью с ориентацией [111].

### 3.3.3 Мелкозернистая медь 99,99996 %

Образец, изготовленный из мелкозернистой меди с чистотой 99,99996 % (Mitsubishi Materials Co., Japan), был облучен протонным пучком до флюенса  $6 \cdot 10^{19}$  см<sup>-2</sup> в условиях тока протонного пучка  $536 \pm 34$  мА. На Рис. 16 показана динамика блистерообразования. Характерный размер блистеров, определенный также как в вышеописанных экспериментах, составил  $155 \pm 45$  мкм.

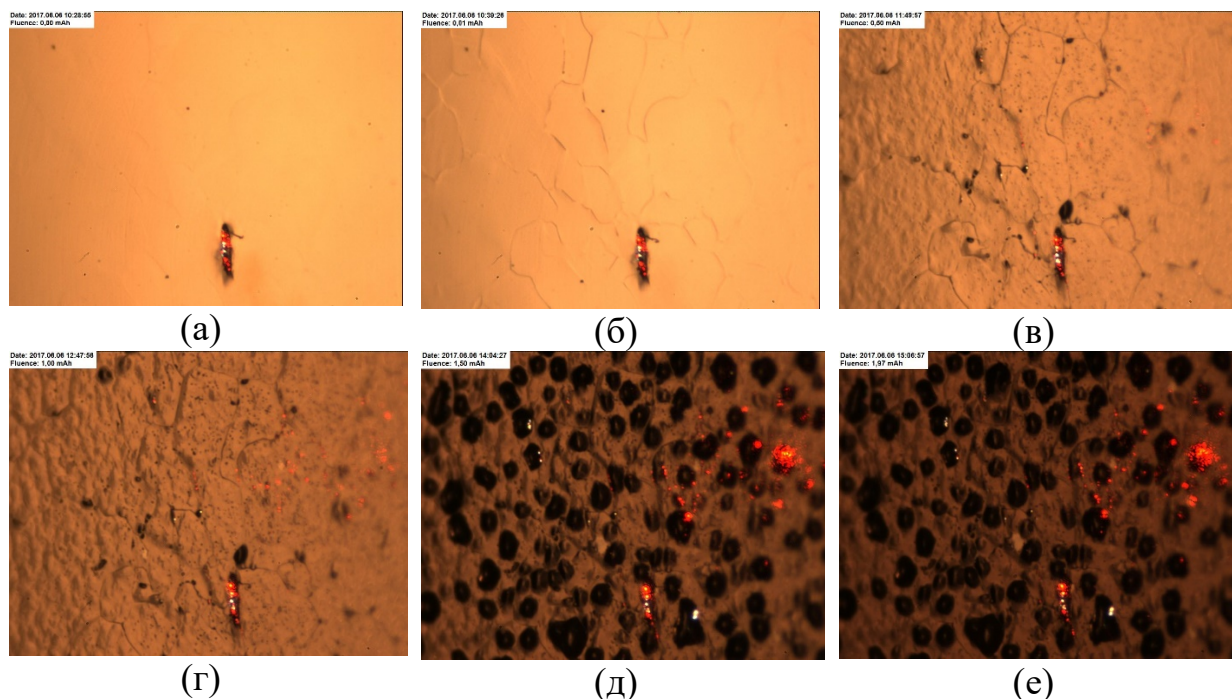


Рис. 16. Динамика блистерообразования на поверхности образца мелкозернистой меди с чистотой 99,99996% под воздействием пучка протонов с энергией 2 МэВ при флюенсе: а) 0 см<sup>-2</sup>; б)  $0,03 \cdot 10^{19}$  см<sup>-2</sup>; в)  $1,8 \cdot 10^{19}$  см<sup>-2</sup>; г)  $3 \cdot 10^{19}$  см<sup>-2</sup>; д)  $4,5 \cdot 10^{19}$  см<sup>-2</sup>; е)  $6 \cdot 10^{19}$  см<sup>-2</sup>.

Из графика зависимости изменения яркости кадра от набранного флюенса (Рис. 17), построенного аналогично Рис. 13, можно сделать вывод, что блистеры начинают появляться при флюенсе  $1,15 \text{ мА}\cdot\text{ч}$  ( $3,45\cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$ ). Это значение в семь раз больше порога блистерообразования для мелкозернистой меди с чистотой 99,996% и в два раза больше, чем для крупнозернистой меди с чистотой 99,99996%.

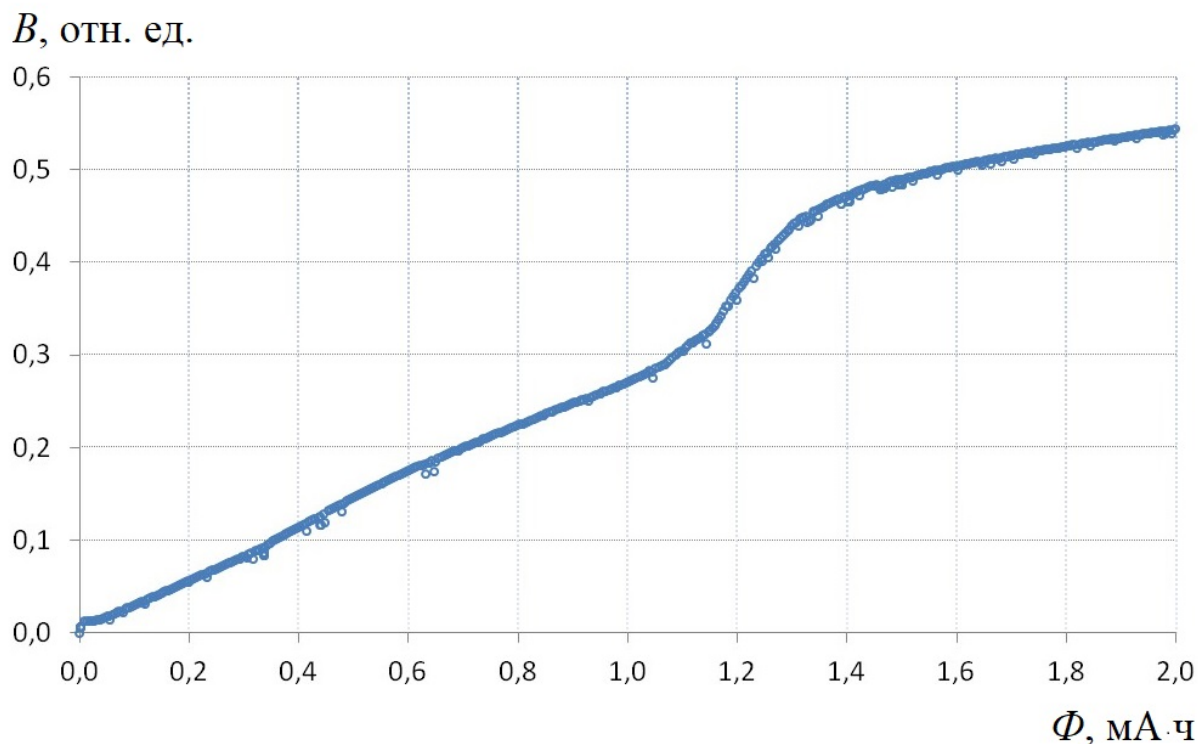


Рис. 17. Изменение яркости изображения -  $V$  относительно интегрального тока протонного пучка -  $\Phi$ .

### 3.4 Облучение тантала и медно-танталовых соединений

Образцы для исследования тантала и медно-танталового соединения представляют собой диски диаметром 30 мм толщиной 3 мм.

При облучении образца из тантала не было обнаружено модификаций поверхности в виде блистеров вплоть до набранного флюенса  $5,4\cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$ , что хорошо видно на изображениях, полученных с помощью лазерного микроскопа Рис. 18.

Образцы медно-танталовых соединений были изготовлены различными способами:

- 1) Образец, изготовленный методом взрывной сварки, после соединения танталовой фольги и медной полочки был прокатан до уменьшения размера в 6 раз, обрезан до желаемой формы, отполирован и отожжен при  $500^{\circ}\text{C}$  в течении 5 часов. Таким образом получен однородный слой тантала толщиной  $160 \pm 5$  мкм.

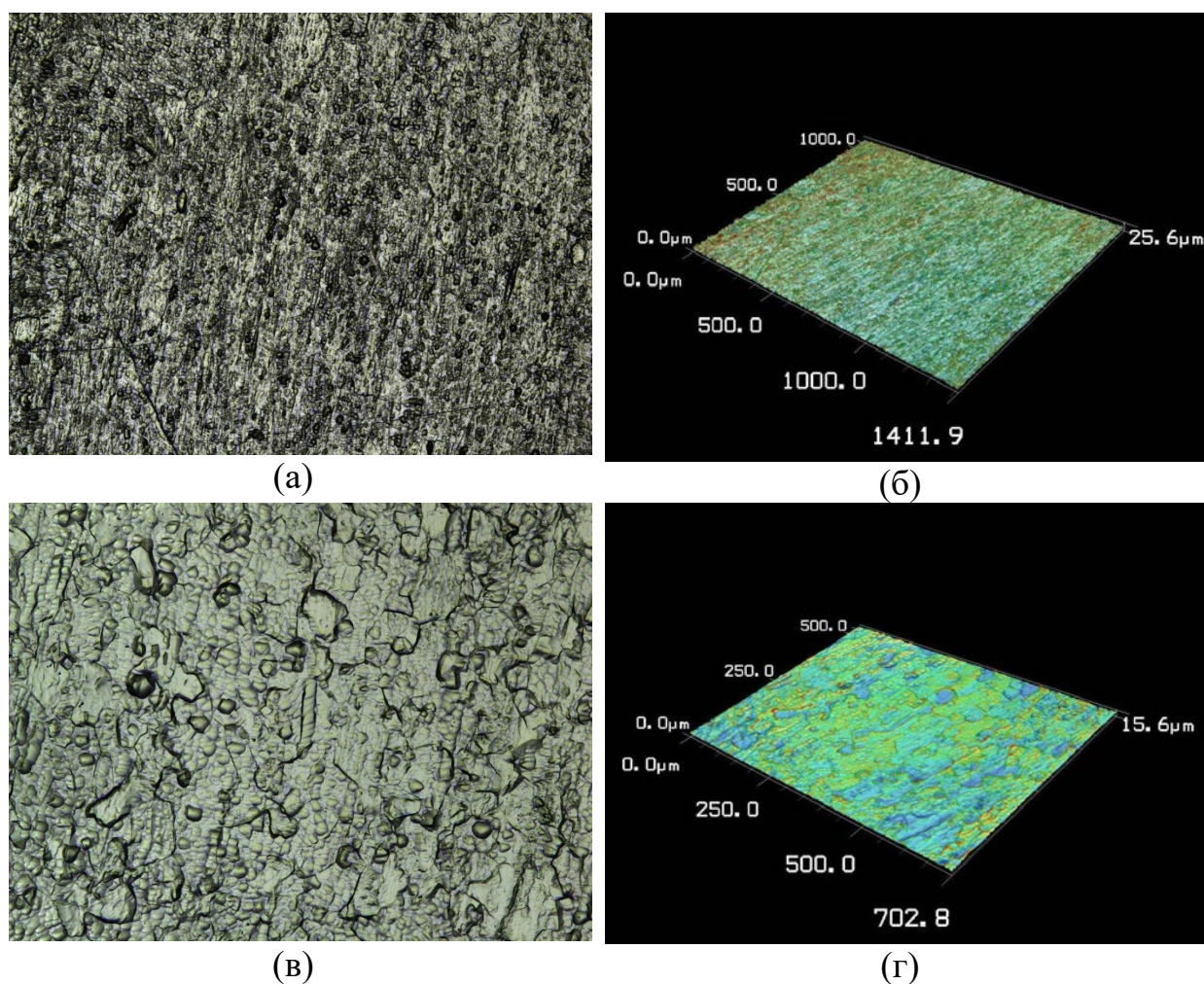


Рис. 18. Изображения поверхности образца тантала, полученные с помощью лазерного микроскопа, и результат их обработки: а, б – до облучения; в, г – после облучения.

Образец был облучен до флюенса  $6 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$  при протонном токе  $437 \pm 96$  мА. Температура образца, измеренная пирометром, составила  $125 \pm 20$  °С. При протонном токе величиной  $505 \pm 16$  мА температура составила

$137 \pm 9$  °С. В течении всего эксперимента не наблюдалось никаких изменений поверхности.

- 2) Образец, изготовленный методом пайки, был выполнен в виде медного диска, который через припой из серебра и палладия был спаян с танталовой фольгой толщиной 50 мкм.
- 3) Диффузионной сваркой были соединены медный диск и танталовая фольга толщиной 50 мкм с предварительно осажденным слоем меди толщиной 200 мкм. Сварка осуществлялась при температуре 500 °С в течении 5 часов.
- 4) С помощью плазменного напыления на медный диск был нанесен медно-танталовый сплав в соотношении меди и тантала 1:1 толщиной 100 мкм.

Соединения меди и тантала, изготовленные по всем вышеописанным технологиям, оказались устойчивы к нагреванию: танталовый слой не разрушился и не отслоился ни на одном из образцов. Однако при одинаковой мощности нагрева у образцов наблюдалась разная температура поверхности (Табл. 4). Это объясняется разным тепловым контактом между слоем тантала и медной подложкой и толщиной танталового слоя.



Табл. 4 - Результаты экспериментов для медно-танталовых соединений, изготовленных с помощью разных технологий.

Технология нанесения	Толщина легированного слоя, мкм	Ток, мкА	T, °C (пирометр)	Max T, °C (ИК камера)
Взрывная сварка	160	505±16	137±9	
Пайка	50	500±16	247	360
Диффузионная сварка	50	505±20	155	280
Плазменное напыление (1:1)	100	505±15	143±9	250

Образец, изготовленный методом взрывной сварки, имел наименьшую температуру поверхности, поэтому было предложено облучить его до флюенса, в 10 раз большего. Таким образом, образец был облучен до флюенса  $6,7 \cdot 10^{20} \text{ см}^{-2}$ . На Рис. 19 представлена фотография образца после облучения с характерным следом от протонного пучка.

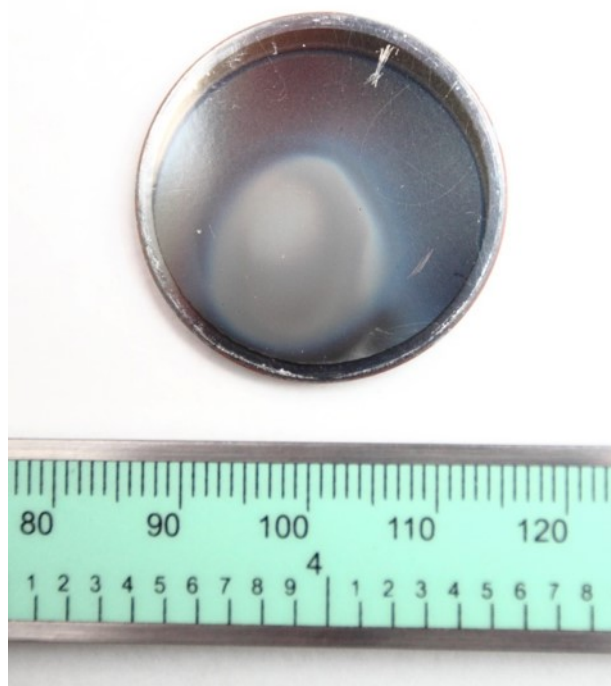


Рис. 19. Фотография облученного образца из меди и тантала, изготовленного методом взрывной сварки, с характерным следом от протонного пучка.

На Рис. 20 представлен график зависимости температуры поверхности образца, измеренной пирометром, от набранного флюенса. Также на графике обозначены значения тока протонного пучка. Стабильность тока в серии составила 2%. Из графика Рис. 20 видно, что со временем облучения температура увеличивается: в начале эксперимента при флюенсе 2 МА·ч температура была  $167 \pm 2$  °С при токе  $502 \pm 9$  мкА, в конце эксперимента при флюенсе 19 - 20 МА·ч она достигла значения  $260 \pm 3$  °С при токе  $512 \pm 8$  мкА.

Следует учесть, что значение, фиксируемое пирометром, могло измениться не только за счет возрастания температуры, но и за счет изменения коэффициента черноты для образца. Чтобы исключить влияние изменения коэффициента черноты, образец был прокалиброван до и после облучения с помощью термопары путем нагревания горячим воздухом, подаваемым через охладительные трубки. Таким образом, температура образца по завершению эксперимента составила 208°С, а не 260°С, как было измерено до калибровки.

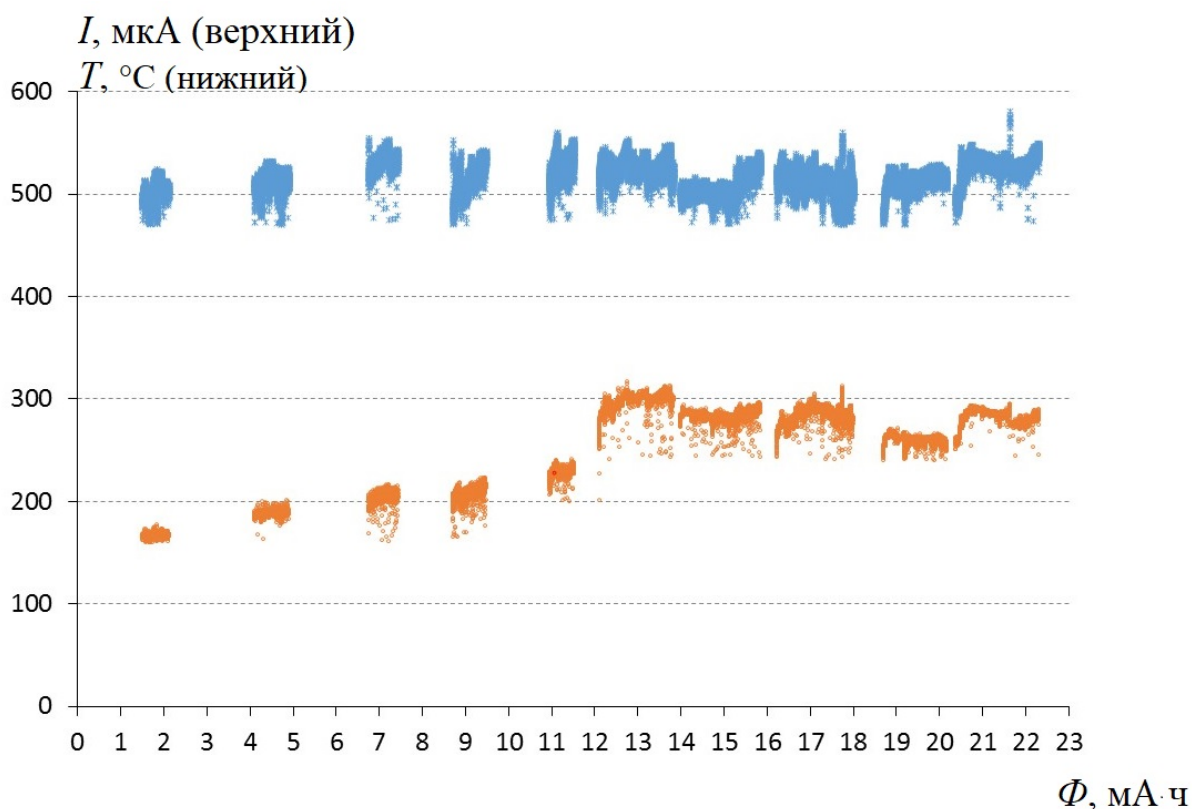


Рис. 20. Зависимость протонного тока -  $I$  и показаний пирометра -  $T$  относительно накопленного интегрального тока протонного пучка.

Видимые модификации поверхности образца не наблюдались вплоть до накопленного флюенса  $3,6 \cdot 10^{20} \text{ см}^{-2}$ , на графике (Рис. 20) это соответствует точке 12  $\text{mA} \cdot \text{ч}$  – момент резкого повышения температуры. Однако, как видно на изображениях, полученных с помощью электронного микроскопа (Рис. 21), модификации поверхности вызваны не блистерами, а скорее возникновением пористой структуры с характерным размером ячейки 1  $\mu\text{м}$ . Появление пористой структуры может быть связано с внедрением водорода в кристаллическую структуру тантала. Ни блистеры, ни отслоение поверхности не наблюдались вплоть до флюенса  $6,7 \cdot 10^{20} \text{ см}^{-2}$ .

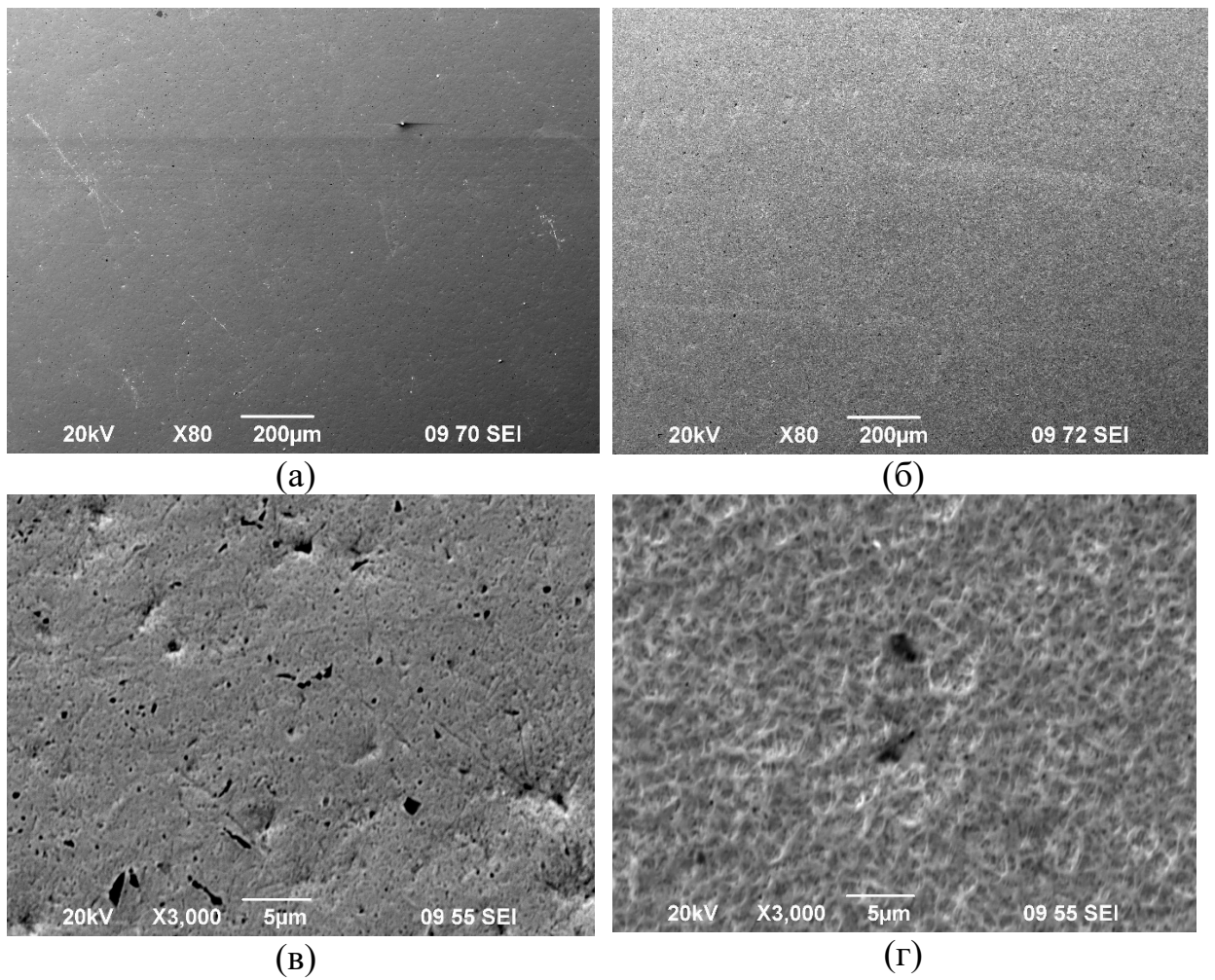


Рис. 21. Изображения поверхности образца из меди и тантала, изготовленного методом взрывной сварки, полученные с помощью электронного микроскопа: до облучения – а, в; после облучения – б, г.

## Выводы и заключение

Для изучения явления блистеринга на поверхности металлов были проведены эксперименты с образцами из меди различной чистоты и структуры поверхности, тантала и медно-танталовых соединений, полученных разными технологиями. Образцы подвергались облучению протонным пучком с энергией 2 МэВ. Результаты экспериментов в общем виде представлены в Табл. 5.

Ключевые выводы можно сформулировать следующим образом:

1. Порог возникновения блистеров на поверхности меди зависит от чистоты материала. Была обнаружена следующая зависимость: чем чище медь, тем выше порог блистерообразования. Максимальный порог составил  $3 \cdot 10^{19}$  см<sup>-2</sup> для образца мелкозернистой меди с чистотой 99,99996%, минимальный  $0,45 \cdot 10^{19}$  см<sup>-2</sup> для мелкозернистой меди с чистотой 99,996%.
2. Обнаружена зависимость размера блистеров от чистоты меди. Так для мелкозернистой меди с чистотой 99,996% размеры блистеров лежали в диапазоне  $40 \pm 20$  мкм, а для мелкозернистой меди с чистотой 99,99996% -  $155 \pm 45$  мкм. Таким образом, чем чище медь, тем крупнее блистеры, возникающие на ее поверхности.
3. При исследовании образцов с различной кристаллической ориентацией не было обнаружено разницы в пороге возникновения блистеров.
4. Когда поверхность облучаемого образца полностью покрывается блистерами, дальнейшее облучение не приводит к возникновению никаких других модификаций, что возможно связано с возникновением трещин при образовании блистеров, позволяющих выходить водороду из приповерхностного слоя.
5. Образцы медно-танталовых соединений, изготовленные путем сварки взрывом, диффузионной сварки, пайки и плазменного напыления устойчивы к тепловой нагрузке до 1 кВт/см<sup>2</sup>.

6. Технология изготовления медно-танталового соединения влияет на теплопроводность полученного образца. В ходе экспериментов наименьшая температура поверхности наблюдалась для образца, полученного методом взрывной сварки.
7. Тантал намного более устойчив к блистерингу, чем медь. Порог для возникновения блистеринга в форме блистеров или отслоения на медно-танталовом образце не был достигнут и при флюенсе  $6,7 \cdot 10^{20} \text{ см}^{-2}$ . Однако при флюенсе  $3,6 \cdot 10^{20} \text{ см}^{-2}$  на поверхности возникла пористая структура с характерным размером ячеек 1 мкм.
8. Во время облучения медно-танталового образца наблюдалось повышение температуры поверхности, которое по-видимому вызвано уменьшением теплопроводности благодаря появлению пористой структуры и внедрению водорода в кристаллическую структуру тантала.

Результаты проведенных исследований имеют важное значение для изготовления нейтроногенерирующей мишени ускорительного источника эпитепловых нейтронов для бор-нейтронозахватной терапии.

Использование ультрачистой меди (99,9996%) в качестве материала подложки мишени позволит проводить терапию для нескольких пациентов (приблизительно 20) без замены мишени. Уменьшение теплопроводности, вызванное возникновением блистеров на поверхности подложки, может не являться критическим фактором для испарения лития. Более того, поверхность перестает деградировать после возникновения блистеров за счет образовавшихся трещин, отслаивание меди не происходит, соответственно нанесенный на медь литиевый слой также не будет отслаиваться.

Табл. 5 - Результаты экспериментов.

Материал	Т, °С Термистор	Т, °С Пирометр	Мах Т, °С ИК камера	Порог, 10 <sup>19</sup> см <sup>-2</sup>	Размер блистеров, мкм
<b>Сu</b> , М0 ГОСТ 859-2014	263 ± 15			1,5	
<b>Сu</b> , 99,996%, мелкозернистая	263 ± 15 130 ± 15	82 ± 16	152	1,5 0,45	40 ± 20
<b>Сu</b> , 99,99996%, крупнозернистая	263 ± 15 130 ± 15	83 ± 8	161	3 1,5 1,5	Трещины 160 ± 50 170 ± 50
<b>Сu</b> , 99,99996%, мелкозернистая	130 ± 15	84 ± 12		3	155 ± 45
<b>Та</b>	600			> 5,6	
<b>Та-Сu</b> (взрывная сварка)		137±9 160-210	240	> 5,6 > 67	Поры (3,6·10 <sup>20</sup> см <sup>-2</sup> )
<b>Та-Сu</b> (пайка)		247	360	> 5,6	
<b>Та-Сu</b> (диффузионная сварка)		155	280	> 5,6	
<b>Та-Сu</b> (плазменное напыление)		143±9	250	> 5,6	

Нанесение тонкого слоя тантала на медную подложку позволяет улучшить устойчивость к блистерообразованию. С другой стороны, накопление протонов в приповерхностном слое тантала приводит к образованию пористой структуры и внедрению водорода в кристаллическую решетку тантала, благодаря чему снижается теплопроводность и поверхность сильно нагревается. Повышение температуры подложки может привести к испарению лития, даже несмотря на отсутствие блистеров на поверхности.

### *Благодарности*

Выражаю искреннюю благодарность моему научному руководителю Александру Николаевичу Макарову за помощь в написании данной работы, а также всей команде БНЗТ за неоценимый вклад в проведении экспериментов. Благодарю за содействие Сергея Александровича Громилова, а также коллег из Института науки и технологии Окинавы: Ясуо Хигаши, Такуя Миязава, Бадрутдинов Александр Олегович, Хиротака Шугавара.



## Список литературы

1. Таскаев С.Ю. Ускорительный источник эпитепловых нейтронов // Физика элементарных частиц и атомного ядра. - 2015. - №6. - С. 770-1830.
2. Neutron Capture Therapy. Principles and Applications / Sauerwein, W., Wittig, A., Moss, R., Nakagawa Y., Nakagawa Y. и др. Springer, 2012. - 533 с.
3. С.Ю.Таскаев, В.В. Каныгин Бор-нейтронозахватная терапия. - Новосибирск: СО РАН, 2016. - 216 с.
4. Bayanov, B., Belov, V., Kindyuk, V., Oparin, E., Taskaev, S. Lithium neutron producing target for BINP accelerator-based neutron source // Applied Radiation and Isotopes. - 2004. - №1. - С. 460-465.
5. Касатов Д.А., Макаров А.Н., Таскаев С.Ю, Щудло И.М. Излучение при поглощении протонов с энергией 2 МэВ // Ядерная физика. 2015. - С. 963-969.
6. Гусева М., Мартыненко Ю. Радиационный блистеринг // Успехи физических наук. - 1981. - №4. - С. 671-691.
7. Распыление твердых тел ионной бомбардировкой / Под ред. Р. Бериша. - М.: Мир, 1986
8. Primak W. // J. Appl. Phys. – 1963. - v. 33 - p. 3630.
9. Kaminsky M. // Bull. Am. Phys. Soc. – 1963. - v. 8 - p. 428.
10. Primak W., Luthra J.—J. Appl. Phys.- 1966. - v. 37 - p. 2287.
11. Ионная имплантация / Х. Риссел, И. Руге; Перевод с нем. В. В. Климова, В. Н. Пальянова. - М. : Наука, 1983. - 360 с.
12. Anderse H., Ziegler J. Hydrogen stopping powers and ranges in all elements. Volume 3 of the stopping and ranges of ions in matter. – N.Y.: Toronto; Oxford; Sydney; Frankfurt; Paris: Pergamont Press Inc., 1977
13. Cowern N. Range distribution function for energetic ions in matter // Phys. Rev. A. – 1982. – V. 26. – P. 2518-2526
14. N.E.W. Hartley.// J. Vac. Sci. Technol., - №12 – 1975. – p. 485.
15. Roth J. Applications of ion beams to materials // Conf. series №28. - London: The Institute of Physics, 1975. - С. 280.

16. Wilson K.L., Haggmark L.G., Langley R.A. // Proc. Intern. Symp. on plasma wall interaction. - Julich: 1976. - C. 401.
17. E. Fromm, E. Gebhardt (Hrsg.) / Gase und Kohlenstoff in Metallen. Reine und angewandte Metallkunde in Einzeldarstellungen, Bd. 26, Springer Verlag, Berlin-Heidelberg - New York: 1976
18. Hydrogen diffusion in metals, a 30-year retrospective / ed. D. Fisher. – Scitec Publication – 1999
19. Gase und Kohlenstoff in Metallen. Reine und angewandte Metallkunde in Einzeldarstellungen, Bd. 26, Springer Verlag, Berlin-Heidelberg-New York 1976
20. Yadava R., Ibohi Singh N., Nigam A. Sponge-like blisters on copper by H<sup>+</sup>-ion implantation at ambient temperatures // J. Phys. D: Appl. Phys. – 1980. – V. 13. – P. 2077-2080
21. Erents and McCracken, 1973. S.K. Erents, G.M. McCracken. Radiat. Eff., 18 (1973), p. 191
22. W. Bauer 1978 SAND-78-8634, 1978, New Mexico
23. Behrish R., Rish M. R., Roth J., Sherzer B.M.U. Proc. 9th Symp. Fusion Technol.. - London: Pergamon Press, 1976. - C. 531.
24. Verbeek H., Eckstein W. Applicatons of Ion Beams to Metals. - New York: Plenum Press, 1974. - C. 597.
25. Risch, M.R., I. Roth and B.M.U. Scherzer, 1979, J. Nucl. Mater. 82, 220.
26. M. Risch. Thesis, University of Munich (1978). also. Report IPP 9/24, Max-Planck-Institut für Plasmaphysik, Garching, FRG (1978)
27. Risch, M. R. (1978). Dissertation, Universität München und Max-Planck-Institut für Plasmaphysik, Rept. IPP 9/24. L. H. Milacek and R. D. Daniels, J. Appl. Phys. 39, 5714 (1968).
28. L. H. Milacek and R. D. Daniels, J. Appl. Phys. 39, 5714 (1968).
29. Roth, J., Behrisch, R., Scherzer, B.M.U., J.Nucl.Mat. 53, 147 (1974)
30. S.K. Das, M. Kaminsky. J. Appl. Phys., 44 (1973), p. 25
31. Bauer W., Thomas G. L. – In: Ion beam Surface Layer Analysis, Vol. 2, eds. O. Meyer, G. Linker, F. Kepler, Plenum Press, New York, 1976, p.575

32. Sone K., Saidoh M., Yamada R., Ohtsuka H., J. Nucl. Mater., 76/77, 240 (1978)
33. Кикоин. И.К. Таблицы физических величин. - Москва: Атомиздат, 1976. - 1008 с.
34. A. Badrutdinov, T. Bykov, S. Gromilov, Y. Higashi, D. Kasatov, I. Kolesnikov, A. Koshkarev, A. Makarov, T. Miyazawa, I. Shchudlo, E. Sokolova, H. Sugawara, S. Taskaev In Situ Observations of Blistering of a Metal Irradiated with 2-MeV Protons // Metals. - 2017. - №7. - С. 558.
35. V.T. Astrelin, A.V. Burdakov, P.V. Bykov, I.A. Ivanov, A.A. Ivanov, Y. Jongen, S.G. Konstantinov, A.M. Kudryavtsev, K.N. Kuklin, K.I. Mekler, S.V. Polosatkin, V.V. Postupaev, A.F. Rovenskikh, S.L. Sinitskiy, E.R. Zubairov Blistering of the selected materials irradiated by intense 200 keV proton beam // Journal of Nuclear Materials. - 2010. - №396. - С. 43-48.