

В. Л. ЗЕФИРОВА, Е. В. КОЛОНЦОВА, И. В. ТЕЛЕГИНА

ВЛИЯНИЕ ОТЖИГА НА ДЕФЕКТНУЮ СТРУКТУРУ ОБЛУЧЕННЫХ НЕЙТРОНАМИ КРИСТАЛЛОВ LiF

(Представлено академиком Г. В. Курдюмовым 30 XII 1970)

Температура кристалла при реакторном облучении и обычных условиях охлаждения определяется составом кристалла, его размерами и условиями облучения; в отдельных случаях она может достигать большой величины (¹, ²). Повышение температуры в комбинации с ускорением диффузионных процессов за счет радиационно-стимулированной диффузии приводит к тому, что при некоторых достаточно больших дозах облучения и, соответственно, относительно больших значениях концентрации точечных дефектов в кристаллах образуются разнообразные скопления дефектов уже в процессе облучения, что и выявляется с помощью дифракционных методов исследования. Так, в облученных нейтронами кристаллах LiF после доз порядка 10^{16} н·см⁻² наблюдается усиление интенсивности диффузного рассеяния в окрестности нулевого узла (³), а дальнейшее облучение приводит к появлению эффектов двумерной дифракции {100} и {111} (⁴⁻⁷), а также эффектов одномерной дифракции <100> (⁸). Одновременно на рентгенограммах облученных кристаллов можно наблюдать рассеяние, соответствующее аморфному (¹) и кристаллическому литию с г.д.к.-решеткой и в отдельных случаях с о.д.к.-решеткой (³⁻⁵, ⁷). Появление изотропного рассеяния на рентгенограммах малоуглового рассеяния указывает на образование равноосных скоплений точечных дефектов с поперечными размерами порядка 20—50 Å (⁹). Относительно интерпретации нарушений, ответственных на эффекты двумерной и одномерной дифракции, нет единого мнения, что связано с принципиальным расхождением в характере экспериментальных данных (³⁻⁷) и частично неоднозначным соответствием между нарушением строения кристалла и дифракционными эффектами.

Полученные нами данные по влиянию отжига на дефектную структуру облученных кристаллов LiF позволяют понять расхождение в исходных экспериментальных данных и устранить противоречие в их трактовке. Методом диффузного и малоуглового рассеяния рентгеновских лучей и электронномикроскопического анализа (по репликам) изучались монокристаллы LiF, облученные нейтронами в интервале $3-7,5 \cdot 10^{18}$ н·см⁻² (по быстрым нейтронам) до и после изохронного отжига (2 часа) при 150—750° С.

Во всех исследованных нами образцах, имеющих размеры около $0,7 \times 0,7 \times 5$ мм, после облучения нейтронами наблюдается анизотропное распределение в виде штрихов по направлениям <100> и <111>, эквивалентное у различных узлов, включая и нулевой узел (по данным малоуглового рассеяния). Это однозначно указывает на появление в облученных кристаллах пластинчатых областей с отличной от среднего значения электронной плотностью, расположенных параллельно плоскостям {100} и {111}. Размеры этих образований в отмеченном интервале доз практически не зависят от интегрального потока и примерно равны $4 \times 200 \times 200$ Å.

Основной особенностью изменений в дифракционной картине, наблюдаемых при отжиге, является различие в характере поведения эффектов двумерной дифракции {100} и {111}. Во всех образцах по мере повышения температуры отжига наблюдается примерно одинаковое изменение изотропного рассеяния и интенсивности, соответствующей двумерной дифракции {100}, как на больших, так и на малых углах*. Интенсивность изотропного рассеяния ослабляется при температурах около 450° и полностью

* Область малых углов, фиксируемых на рентгенограммах малоуглового рассеяния, простирается от $2\theta = 8^\circ$ до 5° ; область больших углов — от $1,5-2^\circ$ до 30° (по рентгенограммам, полученным в камере РКСО).

исчезает при $T = 600^\circ - 700^\circ$ (рис. 1), что указывает на «рассасывание» равноосных скоплений точечных дефектов.

Интенсивность эффектов двумерной дифракции уменьшается в области больших углов и увеличивается около нулевого узла в температурном интервале $300-650^\circ$, что связано с изменением распределения интенсивности по длине и ширине штрихов $\langle 100 \rangle$: начиная с температур порядка $300-350^\circ$, интенсивность «стягивается» к первичному пучку рентгеновских лучей, причем одновременно наблюдается уменьшение ширины штриха по всей его длине (рис. 1). Как видно из рентгенограмм, за счет этого перераспределения интенсивности эффекты двумерной дифракции $\{100\}$ в области больших углов исчезают при температуре порядка 600° (рис. 1А, δ), тогда как у нулевого узла они видны еще довольно отчетливо вплоть до температур 750° , хотя отмеченное выше усиление интенсивности сменяется ослаблением при переходе от $T = 650^\circ$ к $T = 750^\circ$, что объясняется описанным изменением в распределении интенсивности.

Отмеченные изменения интенсивности указывают на увеличение продольных размеров и толщины пластинчатых областей $\{100\}$ (например, при $T = 600^\circ$ средние размеры областей около $50 \times 1000 \times 1000 \text{ \AA}$). Усиление интенсивности штрихов $\langle 100 \rangle$ в интервале $300-600^\circ$ на рентгенограммах малоуглового рассеяния связано с увеличением концентрации укрупненных образований за счет уменьшения концентрации исходных областей и в пределе полного их исчезновения, причем ослабление эффектов двумерной дифракции при больших температурах обусловлено не рассасыванием пластинчатых нарушений, а увеличением размеров областей и их коагуляцией.

Изменение эффектов двумерной дифракции $\{111\}$ в процессе отжига происходит по-разному у различных образцов, получивших примерно одинаковую дозу облучения. В некоторых образцах штрихи по $\langle 111 \rangle$ наблюдаются в области больших и малых углов вплоть до температур отжига порядка 700° . Причем ширина штрихов, как и для описанного случая $\langle 100 \rangle$, уменьшается с повышением температуры, начиная с $T = 350^\circ$, но ни усиления интенсивности, ни заметного изменения распределения ее по длине штриха в области малых углов не фиксируется (рис. 1А). В области больших углов можно наблюдать «стягивание» интенсивности к первичному пучку, начиная с температур порядка 500° (ср. рис. 1А, a и e). Утоньшение штрихов, как и в случае $\langle 100 \rangle$, указывает на увеличение продольных размеров пластинчатых областей, параллельных $\{111\}$, но в отличие от $\{100\}$ распределение их по толщине практически не изменяется, хотя возможно, что некоторые области при высоких температурах незначительно утолщаются*.

Совершенно иной характер носят изменения эффектов двумерной дифракции $\{111\}$ в других образцах: по мере повышения температуры наблюдается заметное ослабление интенсивности штрихов по $\langle 111 \rangle$, приводящее к полному исчезновению их на рентгенограммах малоуглового рассеяния при $T = 300-350^\circ$ (рис. 1Б, b , z), тогда как в области больших

* При небольших изменениях в распределении интенсивности нельзя делать однозначных выводов, поскольку и уменьшение диаметра штабов в пространстве обратной решетки и ослабление интенсивности могут вызывать «стягивание» интенсивности к центру первичного пучка.

Рис. 1. Изменение дифракционных эффектов при отжиге в облученных нейтронами монокристаллах LiF с термостойкими (А) и неустойчивыми (Б) нарушениями $\{111\}$. a , e , δ — диффузное рассеяние (монокроматическое излучение Mo- K_α); b , z , e , $ж$ — малоугловое рассеяние (смешанное излучение Си-анода с Ni-фильтром). На рис. 1А $T = 300^\circ \text{ C}$ (a , b), 500° (e , z), 600° (δ , e); 1 — Li-о.д.к.; на рис. 1Б, a , b — до отжига, $T = 350^\circ$ (e , z), 400° (δ , e), 600° ($ж$)

Рис. 2. Рельеф поверхности свежего скола до отжига (a , $20\,000 \times$) и после (b , e , z). Доза $7,5 \cdot 10^{18}$ н.см $^{-2}$; b — $T = 500^\circ \text{ C}$, z — 600° C , $30\,000 \times$; e — $T = 700^\circ$, $10\,000 \times$

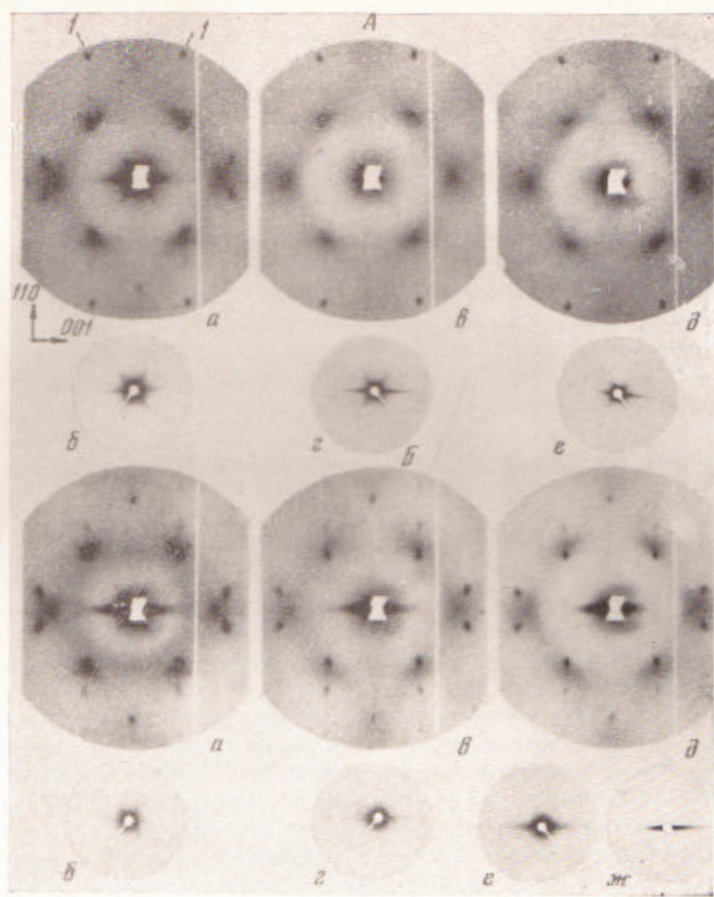


Рис. 1

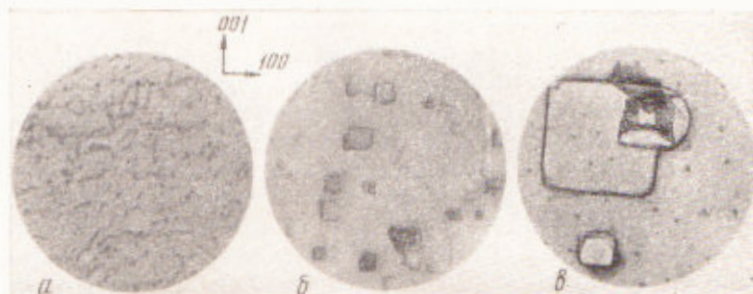


Рис. 2

углов рассеяние по $\langle 111 \rangle$ наблюдается значительно в более широком температурном интервале (вплоть до температур 450° , рис. 1Б, в, д).

В образцах с термостойкими нарушениями $\{111\}$ интенсивность рефлексов от г.д.к. и о.д.к. лития существенно выше (см. рис. 1А, а и 1Б, в), и, кроме того, окраска этих образцов в процессе нагрева изменяется по-разному.

Из приведенных данных по температурной зависимости дифракционных эффектов при отжиге можно заключить, что за эффекты двумерной дифракции $\{111\}$ в облученных кристаллах ответственны два типа анизотропных нарушений: термостойкие, которым соответствуют скопления точечных дефектов пластинчатой формы, и нестойкие, представляющие собой, возможно, «захлопнутые» скопления — дислокационные петли, способные к отжигу в температурном интервале $300\text{--}450^\circ$. Их стабильность падает с увеличением величины вектора Бюргерса, что хорошо согласуется с поведением штрихов $\langle 111 \rangle$ в малоугловой области. Образование скоплений или петель может быть связано с различием энергий нейтронов по аналогии, например, с тем, что наблюдается при облучении серебра⁽⁸⁾.

Различие в поведении скоплений, ориентированных по $\{100\}$ и $\{111\}$, вероятнее всего, связано с различием точечных дефектов, образующих эти скопления, однако возможно, что на толщину скоплений известно влияние оказывают и структурные факторы — нейтральность плоскостей $\{100\}$ и различие в знаке заряда на параллельных плоскостях $\{111\}$. Полученные рентгеновскими методами данные недостаточны для однозначного определения типа точечных дефектов, образующих скопления в плоскостях $\{100\}$ и $\{111\}$. Однако на основании проведенных сопоставлений рентгеновских данных и данных электронномикроскопического и микроскопического анализов⁽⁹⁾ можно заключить, что в облученных кристаллах LiF скопления в плоскостях $\{100\}$ образованы вакансиями, а не прослойками лития⁽⁴⁾. Это следует из оценки разными методами зависимости размеров областей от температуры отжига, позволяющей с учетом возможностей каждого метода проследить за непрерывностью развития исходных областей с размерами $4 \times 200 \times 200 \text{ \AA}$ до наблюдаемых микроскопическим методом пор с размерами порядка $1\text{--}10 \text{ \mu}$ (рис. 2), а также из проведенного ранее сопоставления интенсивностей эффектов двумерной дифракции и рассеяния на литии^(5, 7).

Как отмечалось выше, различие в трактовке нарушений, ответственных за эффекты двумерной дифракции, следовало из несоответствия экспериментальных данных: французские исследователи не наблюдали анизотропного рассеяния по $\langle 111 \rangle$ у нулевого узла и считали, что за эффекты двумерной дифракции $\{111\}$ у других узлов ответственны дефекты унаковки в г.д.к. лития⁽⁴⁾. В свете описанных данных очевидно, что различия в условиях облучения (температура, энергия и, возможно, мощности потоков нейтронов) могут привести к перескоку через исходную стадию, характеризующую эквивалентностью рассеяния у различных узлов, включая и нулевой узел. По литературным⁽²⁾ и полученным нами данным, этому способствуют повышение температуры при облучении крупных монокристалльных блоков, из которых после облучения выкалываются образцы для дифракционного анализа.

Московский государственный университет
им. М. В. Ломоносова

Поступило
29 XII 1970

ЦИТИРОВАННАЯ ЛИТЕРАТУРА

- ¹ A. C. Greene, H. O. Hooper, P. J. Bray, Phys. Stat. Sol., 27, 1, 163 (1966).
² А. Я. Витол, К. К. Шварц, Изв. АН ЛатвССР № 5, 66 (1967). ³ M. Lambert, Thèse, 1958. ⁴ M. Lambert, Ch. Mazières, A. Guinier, J. Phys. Chem. Sol., 18, 2—3, 129 (1961). ⁵ И. В. Телегина, Е. В. Колонцова, Кристаллография, 9, 3, 342 (1964). ⁶ И. В. Телегина, Е. В. Колонцова, ДАН, 187, № 3, 566 (1969).
⁷ И. В. Телегина, Е. В. Колонцова, В. В. Зубенко, Действие ядерных излучений на материалы, Изд. АН СССР, 1962, стр. 264. ⁸ T. Schober, Phys. Stat. Sol., A1, 2, 307 (1970). ⁹ J. J. Gilman, W. G. Johnston, J. Appl. Phys., 29, 6, 877 (1958).