

ЭФФЕКТ ПЛАСТИФИЦИРОВАНИЯ И ВОЗБУЖДЕНИЕ ЭЛЕКТРОННОЙ ПОДСИСТЕМЫ В МОНОКРИСТАЛЛЕ LiF ПОД ДЕЙСТВИЕМ УЛЬТРАСЛАБОГО ПОТОКА ТЕРМАЛИЗОВАННЫХ НЕЙТРОНОВ В РЕЖИМЕ РЕЛАКСАЦИИ МЕХАНИЧЕСКИХ НАПРЯЖЕНИЙ

А.Г.Липсон¹⁾, Д.М.Саков, В.И.Савенко, Е.И.Саунин

Институт физической химии РАН

117915 Москва, Россия

Поступила в редакцию 1 июня 1999 г.

После переработки 16 июня 1999 г.

Обнаружено явление пластифицирования при релаксации напряжений в одноосно-нагруженных монокристаллах LiF под действием ультраслабого потока термализованных нейтронов (УПТН) интенсивностью $I_n \sim 100$ н/см²·с. Показано, что при облучении нагруженных образцов LiF УПТН наблюдается возбуждение электронной подсистемы кристалла, выражающееся в стимуляции деформационной экзэмиссии электронов и генерации F -центров.

PACS: 61.72.Lk; 61.80.Ng; 79.75.+g

Ранее было установлено, что в процессе облучения некоторых существенно неравновесных твердых тел ультраслабым потоком термализованных нейтронов (УПТН) с интенсивностью $I_n \leq 10^2$ н/см²·с наблюдается аномальное увеличение захвата нейтронного потока, сопровождающееся измеримой генерацией дефектов в облучаемых кристаллах [1–3]. Следует отметить, что регистрируемые под действием УПТН эффекты нетривиальны, поскольку с энергетической точки зрения их образование на первый взгляд представляется неадекватным нейтронному флюенсу, взаимодействующему с образцом. Поэтому дефектообразование в кристаллах под действием УПТН можно отнести к проявлению синергетического, по своей основе, разрушающего энергетический барьер [4] эффекта "сверхмалых доз". В то же время в последние годы установлено [5] и подробно изучено [6, 7] влияние весьма слабых электромагнитных воздействий на динамику дислокаций и точечных дефектов в приповерхностных слоях щелочно-галогидных кристаллов (ЩГК). Это указывает на тот факт, что изменение дефектной структуры ЩГК и, в частности, их пластическое течение также могут быть стимулированы при поглощении достаточно малых порций энергии.

В настоящей работе с целью выяснения природы эффекта воздействия УПТН на неравновесные кристаллические системы исследованы режимы релаксации механических напряжений и сопутствующие им процессы стимуляции деформационной экзэмиссии электронов (ДЭЭ) [8-10] в кристаллах LiF при облучении их ультраслабым потоком термализованных нейтронов.

В экспериментах использовали монокристаллы LiF (производство ЛОМО), выращенные из расплава, с суммарной концентрацией двухвалентных примесей $\sim 10^{-3}$ ат.%, которые имели предел текучести $\sigma_y = 9.0$ МПа. Образцы с размерами $10 \times 5 \times 1.5$ мм непосредственно перед помещением в установку выкальвывались из мо-

¹⁾ e-mail: lipson@lmm.phyche.msk.su

ноблока по плоскостям спайности (001) и зажимались между пуансонами при фиксированной общей деформации. Начальное напряжение одноосного сжатия выбиралось в интервале $\sigma = 7.0 - 10$ МПа, в зависимости от условий эксперимента. Держатель вместе с образцом помещался в вакуумную камеру ($P = 10^{-6}$ торр). Регистрация ДЭЭ проводилась с помощью канального электронного умножителя ВЭУ-6. Вакуумная установка, описанная в [11], с целью обеспечения термализации и отражения тепловых нейтронов была окружена слоем полиэтиленовых блоков "neutrostop" (Со) толщиной 15 см. Для создания поля термализованных нейтронов внутрь установки, на расстоянии 20 см от образца, вносился Cf-252 источник быстрых нейтронов интенсивностью $I = 1.5 \cdot 10^3$ н/с, испускаемых в телесный угол 4π . Источник нейтронов, размещенный в свинцовом контейнере, в свою очередь был покрыт полиэтиленовой оболочкой толщиной 5 см.

Для определения интенсивности потока термализованных нейтронов, а также доли УПТН, захватываемой в образце, применялся метод нейтронно-радиационного анализа [3]. С целью оценки концентрации центров окраски (F -типа), генерируемых в кристаллах LiF при механическом нагружении под действием УПТН, использовали метод ЭПР [11,12].

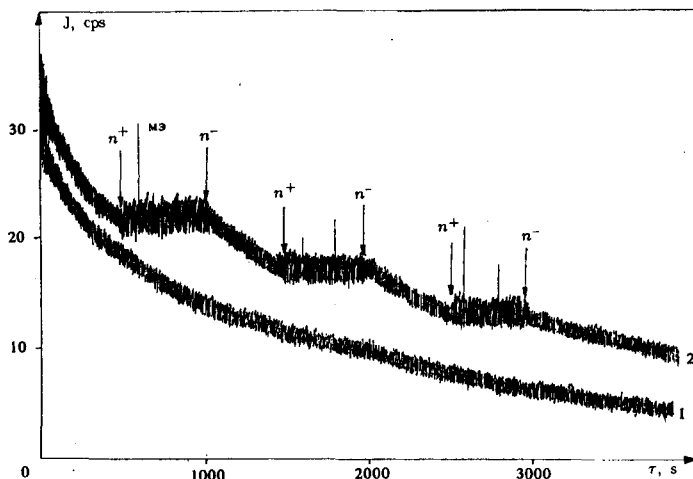


Рис.1. Кривая 1: Кинетика ДЭЭ монокристалла LiF (свежий скол) при напряжении одноосного нагружения $\sigma = 7.0$ МПа в условиях естественного фона тепловых нейтронов (остаточная деформация $\epsilon_p < 0.1\%$); Кривая 2: То же для другого образца LiF при $\sigma = 7.0$ МПа, в условиях внесения источника УПТН $I_n = 100$ н/см²·с (n^+) и его удаления (n^-). Стрелками обозначены моменты внесения и удаления источника нейтронов (остаточная деформация образца $\epsilon_p \cong 0.1\%$)

На рис.1 (кривая 1) представлена кинетика ДЭЭ в кристалле LiF при его выдержке в режиме релаксации напряжений ниже макроскопического предела текучести в отсутствие источника УПТН. Как и следовало ожидать, кривая ДЭЭ в данном случае носит экспоненциально спадающий характер, что обусловлено затуханием дислокационного тока в условиях релаксации напряжений в образце [8,9]. При внесении источника УПТН (n^+) внутрь установки спад ДЭЭ быстро прекращается (рис.1, кривая 2). После удаления источника нейтронов (n^-) спад ДЭЭ практически мгновенно восстанавливается вновь; и так продолжается далее при повторении процедур (n^+) \leftrightarrow (n^-) до уменьшения интенсивности эмиссии примерно в 2 раза от ее начального

уровня. Одновременно при внесении источника УПТН наблюдается появление периодических всплесков механоэмиссии электронов которые отсутствуют в условиях естественного нейтронного фона (рис.1, кривая 1) и указывают на образование микротрещин в приповерхностном слое деформированного кристалла [13]. При наличии макроскопической остаточной деформации монокристаллов после снятия нагрузки и действия УПТН, то есть при $\epsilon_p \geq 1\%$, кинетика ДЭЭ носит принципиально иной характер (рис.2), чем для образцов, у которых остаточная деформация выражена слабо. Внесение источника нейтронов (n^+) для образцов, находящихся под напряжением, близким к макроскопическому пределу текучести (рис.2), приводит к их дополнительной деформации, сопровождающейся ростом интегральной интенсивности ДЭЭ и микрорастрескиваниями, приводящими к интенсивным всплескам механоэмиссии электронов. При этом, устранение источника (n^-) не сопровождается падением интенсивности ДЭЭ, то есть восстановлением спада, предшествовавшего внесению УПТН, поскольку при макропластической деформации кристалла на концах заторможенных полос скольжения возникают значительные внутренние микронапряжения, дополнительно стимулирующие перемещение подвижных дислокаций и, как следствие, увеличение выхода ДЭЭ.

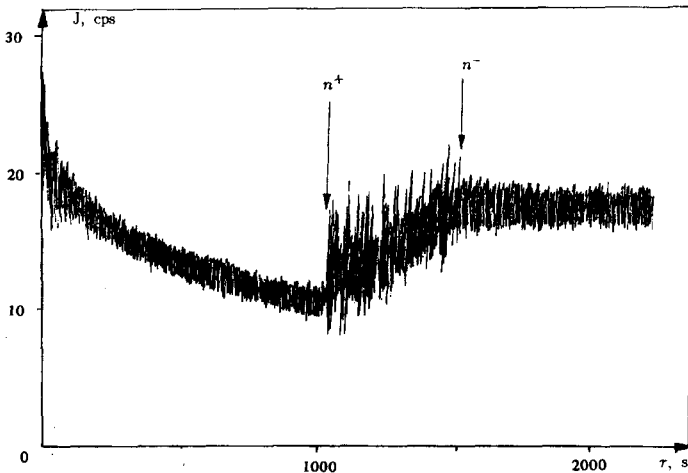


Рис.2. Кинетика ДЭЭ в одноосно-нагруженном кристалле LiF ($\sigma = 9.2$ МПа) при внесении (n^+) и удалении (n^-) источника нейтронов (остаточная деформация образца $\epsilon_p \cong 1.5\%$)

Следует подчеркнуть, что наблюдаемые эффекты изменения кинетических особенностей ДЭЭ при взаимодействии одноосно-нагруженных кристаллов LiF с УПТН, несмотря на индивидуальность спектра ДЭЭ каждого отдельного кристалла, являются достоверными (не статистическими), поскольку детектирование ДЭЭ в условиях естественного фона и в присутствии УПТН производится в различные промежутки времени на одном и том же образце.

Согласно известным представлениям о механизме дислокационной экзоэмиссии электронов в ШГК, при малых скоростях деформации ($\dot{\epsilon}_p \sim 10^{-5}$) [9] интенсивность ДЭЭ определяется плотностью дислокационного тока в нагруженном кристалле и концентрацией F -центров в нем. При этом для наличия постоянного тока ДЭЭ необходимо, чтобы дислокации, движущиеся к поверхности образца, срывали электроны с F -центров. Увеличение дислокационного тока в кристаллах под действием УПТН в наших экспериментах подтверждается наличием значимой дополнительной оста-

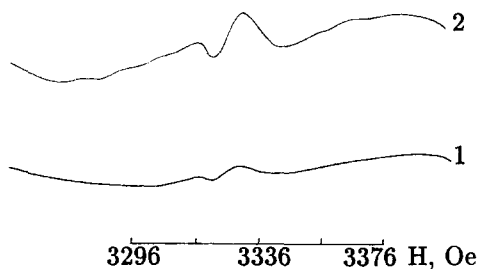


Рис.3. Спектры ЭПР порошков LiF при $T = 300$ К, диспергированных в течение 15 мин в условиях естественного нейтронного фона (1) и при облучении УПТН [11]: $I_n = 100$ н/см²·с (2)

точной пластической деформации образцов. Эффект генерации F -центров в монокристаллах LiF оценивался путем экстраполяции данных, полученных для порошкообразных образцов, приготовленных путем измельчения исходных монокристаллов, поскольку определение центров окраски в предварительно неокрашенных монокристаллах не представляется возможным из-за слабости регистрируемого сигнала ЭПР. Использование же свежеизмельченных порошков LiF позволяет, по меньшей мере, качественно судить о вкладе УПТН в генерацию F -центров в нагруженных кристаллах. На рис.3 представлены спектры ЭПР образцов, снятые при температуре $T = 300$ К. Спектр измельченного в течение 15 мин в условиях естественного нейтронного фона кристалла LiF представляет собой широкую линию ($\Delta H = 120$ Э, $g = 2.0018$), которую относят к сигналу F -центров [14], локализованных изотропно в дисперсных частицах (рис.3, кривая 1). Интенсивность сигнала, полученного для порошка, измельченного в условиях естественного нейтронного фона, достаточно низка и составляет $I_1 \sim 10^{14}$ спин/г. В то же время, интенсивность аналогичного сигнала (рис.3, кривая 2), полученного для порошков LiF, диспергированных в течение 15 мин при облучении их УПТН [11], оказывается по меньшей мере на 1 порядок выше ($I_2 \sim 10^{15}$ спин/г). Поэтому данные ЭПР позволяют сделать вывод о том, что облучение кристаллов LiF УПТН при механическом нагружении приводит к дополнительной генерации электронных центров окраски (F -центров).

В первом приближении механизм эффекта пластифицирования и изменения кинетики ДЭЭ под действием УПТН представляется следующим. При введении источника УПТН (рис.1, кривая 2, n^+) должна происходить интенсификация процессов транспорта дислокаций и генерации точечных дефектов в объеме кристалла. С термодинамической точки зрения данный эффект эквивалентен увеличению скорости пластической деформации или повышению температуры образца при механическом нагружении. Облучение образцов УПТН при релаксации напряжений приводит к появлению дополнительной составляющей ДЭЭ за счет увеличения подвижности дислокаций и генерации F -центров. Устранение источника УПТН вызывает уменьшение скорости подвижных дислокаций, понижая уровень пластической деформации кристалла, следствием чего будет являться спад ДЭЭ (рис.1, кривая 2, n^-). Отметим, что об интенсификации процесса пластической деформации образцов LiF при облучении также свидетельствует образование микротрещин, проявляющееся в виде всплесков механоэмиссии электронов.

Рассмотрим возможные физические причины, лежащие в основе наблюдаемых эффектов пластифицирования и возбуждения электронной подсистемы нагруженных кристаллов LiF при действии УПТН. Как показали измерения нейтронных потоков в рабочем объеме установки методом нейтронно-радиационного анализа, в процес-

се одноосного сжатия монокристаллов LiF происходит поглощение до 3.0% падающего на образец потока термализованных нейтронов. Близкие по величине эффекты поглощения УПТН наблюдались ранее в других неравновесных кристаллических системах, в которых происходит изменение физических свойств под действием тепловых нейтронов [1-3]. Можно предположить, что аномальное поглощение термализованных нейтронов в нагруженном кристалле LiF связано с неупругими потерями энергии медленных нейтронов при их рассеянии на неравновесных оптических фонах решетки [15], генерируемых при ее механическом возбуждении [16]. В рамках представления о том, что большая часть энергии составных ядер, образованных при захвате тепловых нейтронов, непосредственно поглощается окружающей ядра решеткой [1] (нейтронный эффект Мессбауера [17]), оценим влияние УПТН на динамику дислокационного транспорта в монокристалле LiF. При сбросе энергии составных ядер в виде возбуждений решетки в зонах концентрации напряжений она будет эффективно передаваться на дислокации и/или на блокирующие их стопоры (примеси и точечные дефекты). При типичных скоростях деформации $\dot{\epsilon}_p \sim 10^{-5} \text{ с}^{-1}$ плотность подвижных дислокаций в объеме кристалла составляет $N_d = 10^5 \text{ см}^{-2}$ [9,18]. С учетом характерного времени действия УПТН в наших экспериментах $\tau_n \sim 10^3 \text{ с}$ (рис.1,2), принимая во внимание известное соотношение между величиной пластической деформации в режиме релаксации напряжений и средней скоростью дислокаций v_d [19]: $\epsilon_p = \dot{\epsilon}_p \tau_n = N_d b v_d \tau_n$, где b – вектор Бюргерса и $v_d = v_0 \exp[-(U_0 - \gamma\sigma)/kT]$, можно оценить удельную мощность W_d , необходимую для обеспечения эффекта пластифицирования образцов LiF в результате увеличения скорости дислокаций ($v_{d_0} \rightarrow v_n$) под действием УПТН. Поскольку в рамках рассматриваемой модели энергия, необходимая для увеличения скорости дислокаций фактически отбирается из фононной подсистемы кристалла [15], соответствующая оценка дает: $W_d = \tau_n^{-1} c_p \rho [kT^2 / (U_0 - \gamma\sigma)] \ln(\epsilon_{pn} / \epsilon_{p_0}) \approx 1 \text{ Дж/см}^3 \cdot \text{с}$. Здесь $c_p = 42 \text{ Дж/г} \cdot \text{град}$ – удельная теплоемкость образца, $\rho = 2.6 \text{ г/см}^3$ – его плотность, $T = 300 \text{ К}$ – температура, $U_0 - \gamma\sigma \approx 0.7 \text{ эВ}$ [19] – энергия активации отрыва дислокаций от стопоров в нагруженном образце, $\gamma = 10^{-21} \text{ см}^3$ – активационный объем, заметаемый дислокацией при отрыве от стопора, ϵ_{pn} и ϵ_{p_0} – пластическая деформация в присутствии и в отсутствие УПТН, соответственно ($\epsilon_{pn} / \epsilon_p \approx 10$).

В то же время, оценка удельной мощности W_c , выделяемой в зонах концентрации напряжений, то есть на застопоренных участках дислокаций, в результате трансформации энергии составного ядра, образованного при захвате нейтронов, в энергию фононной подсистемы дает $W_c = (0.03 I_n E_n / h) / N_d b^2 c^{1/3} \approx 10 \text{ Дж/см}^3 \cdot \text{с}$, где I_n – величина УПТН, $E_n = 2.1 \text{ МэВ}$ – энергия связи нейтрона в ядре ${}^8\text{Li}$, h – толщина образца, $c = 10^{-3} \text{ ат.}\%$ – атомная концентрация двухвалентных стопоров в кристалле.

Из приведенных оценок следует, что высвобождаемая при захвате тепловых нейтронов удельная мощность (W_c) примерно на порядок больше той, что необходима для активации дислокационного транспорта. В этой связи, существенная часть W_c может также расходоваться на образование анионных вакансий и заполнение их электронами, то есть на генерацию F -центров ($E_f = 5.0 \text{ эВ}$). Кроме того, образование новых F -центров обеспечивается при интенсификации пересечения дислокаций [10],двигающихся в условиях одноосного нагружения ШГК и действия УПТН. Таким образом, при поглощении УПТН нагруженным монокристаллом LiF создаются условия для стимуляции его пластического течения, приводящего к эффективному воз-

буждению электронной подсистемы облучаемого кристалла (генерация электронных центров окраски и интенсификация ДЭЭ). Следует подчеркнуть, что ранее эффекты разупрочнения ЦГК под действием тепловых нейтронов наблюдались лишь при реакторных потоках [20], то есть имеющих плотность, превосходящую использованный УПТН по меньшей мере на 10 порядков величины. В заключение отметим, что дополнительным механизмом пластифицирования ЦГК под действием УПТН может являться также перестройка структуры самих стопоров, сопровождаемая понижением активационных барьеров движения дислокаций.

С целью детализации микромеханизма обнаруженного эффекта планируются дальнейшие исследования на моноэнергетических пучках нейтронов с использованием кристаллов с различной концентрацией примесей.

Авторы благодарны А.В.Стрелкову, В.К.Игнатовичу, Л.Б.Пикельнеру, С.З.Шмураку за полезные обсуждения.

-
1. А.Г.Липсон, Д.М.Саков, Е.И.Саунин, Письма в ЖЭТФ **62**, 806 (1995).
 2. А.Г.Липсон, Б.Ф.Ляхов, Е.И.Саунин и др., Письма в ЖТФ **22**, 42 (1996).
 3. А.Г.Липсон, И.И.Бардышев, В.А.Кузнецов, Б.Ф.Ляхов, ФТТ **40**, 254 (1998).
 4. Я.Б.Зельдович, А.Л.Бучаченко, Е.Л.Франкевич, УФН **155**, 3 (1988).
 5. В.И.Альшиц, Е.В.Даринская, Т.М.Перекалина, А.А.Урусовская, ФТТ **29**, 467 (1987).
 6. Ю.И.Головин, Р.Б.Моргунов, Письма в ЖЭТФ **61**, 583 (1995).
 7. В.И.Альшиц, Н.Н.Беккауер, А.Е.Смирнов, А.А.Урусовская, ЖЭТФ **116**, 951 (1999).
 8. А.В.Полетаев, С.З.Шмурак, Письма в ЖТФ **7**, 1352 (1981).
 9. А.В.Полетаев, С.З.Шмурак, ЖЭТФ **87**, 657 (1984).
 10. В.А.Закревский, А.В.Шульдинер, ФТТ **27**, 3042(1985).
 11. А.Г.Липсон, Д.М.Саков, В.В.Громов, Е.И.Саунин, ФТТ **35**, 2503 (1993).
 12. А.Г.Липсон, В.А.Кузнецов, Е.И.Саунин и др.; ЖТФ **67**, 100 (1997).
 13. J.T.Dickinson, E.E.Donaldson, and M.K.Park, J. Mat. Sci. **16**, 2897 (1981).
 14. R.Kaplan and P.J.Bray, Phys. Rev. **129**, 1919 (1963).
 15. P.A.Egelstaff and G.Holt, in *Inelastic scattering of neutrons in solids and liquids*, Proc. Int. Symp., Chalk River, 1962, v.2, Vienna, 1963, p.178.
 16. А.Г.Липсон, В.А.Кузнецов, ДАН **332**, 172 (1993).
 17. H.Frauenfelder, *The Mossbauer Effect*, Benjamin, New York, 1962.
 18. В.З.Бенгус, Е.Д.Табачникова, В.Н.Островерх, ФТТ **15**, 3452 (1973).
 19. Б.И.Смирнов, *Дислокационная структура и упрочнение кристаллов*, Л.: Наука, 1981.
 20. А.А.Урусовская, М.Н.Пержинова, ФТТ **10**, 3146 (1968).