

В. Б. Москаленко*, О. М. Бугай, В. Л. Денисенко*Інститут прикладної фізики НАН України, Суми, Україна*

*Відповідальний автор: moskalenko@ipflab.sumy.ua

**ОТРИМАННЯ БАГАТОЗАРЯДНИХ ІОНІВ ЗАЛІЗА ^{56}Fe З ЕНЕРГІЄЮ 0,64 - 7,92 МеВ
ДЛЯ ОПРОМІНЕННЯ КОНСТРУКЦІЙНИХ МАТЕРІАЛІВ**

Розглядається можливість створення пучка багатозарядних іонів заліза ^{56}Fe на прискорювальному мас-спектрометрі Інституту прикладної фізики (ІПФ) НАН України з метою імітаційного опромінення реакторних матеріалів та дослідження їх під дією опромінення. Мас-спектр прискорених іонів демонструє наявність у ньому іонів заліза різних зарядових станів (до $^{56}\text{Fe}^{8+}$). Хоча іонний струм зменшується зі збільшенням зарядового стану, багатозарядні іони можуть бути використані для опромінення зразків у тих випадках, коли задача потребує більшої енергії іонів. Показано, що швидкість утворення дефектів у зразку заліза, опромінюваному іонами $^{56}\text{Fe}^{2+}$ з енергією 2,52 МеВ, становить $2,7 \cdot 10^{-3}$ зна/с.

Ключові слова: пучок, опромінення, багатозарядний іон, іони заліза, мас-спектр, зна/с.

1. Вступ

На сьогодні однією з ключових проблем розробки ядерних реакторів IV покоління і термоядерних реакторів є створення матеріалів, здатних без втрати конструкційних властивостей витримувати високі потоки іонного та нейтронного опромінення. Проте зараз відсутні експериментальні реактори, де можна було б опромінювати реакторні матеріали до високих доз за прийнятний час. Виходом із ситуації, що склалася, стали імітаційні експерименти – опромінення перспективних матеріалів іонами на прискорювачах замість опромінення їх нейтронами в реакторах. Подібний підхід критикується деякими розробниками реакторів через невідповідність умов опромінення на прискорювачі умовам опромінення в реальних реакторах, проте були сформульовані критерії подібності умов у реакторі умовам опромінення на прискорювачах [1].

Ключовим параметром установок для проведення імітаційних експериментів є швидкість набору дози, або швидкість дефектоутворення. Цей параметр залежить від пари «іон - матеріал», енергії первинних іонів, температурних умов опромінення. Іони металів мають значно більшу масу, ніж нейтрони, тому при співставних енергіях продукують набагато більше точкових дефектів. Водночас створення багатозарядних іонів металів дає змогу отримати пучок іонів більшої енергії при тому самому потенціалі на високовольтному електроді прискорювача.

Як правило, для створення дефектів у матеріалах використовуються імплантери іонів невисокої енергії, до 300 кВ. Одна з найкращих установок для проведення імітаційних досліджень створена в ННЦ «Харківський фізико-технічний

інститут», яка дозволяє досягти рекордної дози опромінення до 500 зм'ячень на атом (зна). Проте в цій установці виникають додаткові труднощі, спричинені необхідністю розміщення зразків усередині високовольтного електрода. В ІПФ НАН України функціонує імплантер із прискорюючою напругою до 300 кВ та високою густиною іонного струму. Однак при таких енергіях ускладнюються експериментальні дослідження, наприклад, радіаційно-стимульованої сегрегації внаслідок малої глибини проникнення іонів.

Для одержання пучків багатозарядних іонів металів з енергією до 1 МеВ в ІПФ НАН України існує можливість використання прискорювального мас-спектрометра з максимальною напругою на кондукторі 1 МВ. У даній роботі проводиться розрахунок швидкостей продукування пар дефектів для іонів заліза різного зарядового стану. Такі пучки іонів забезпечать потрібну для проведення імітаційних експериментів швидкість дефектоутворення. Метою роботи є обґрунтування можливості проведення імітаційних експериментів з опромінення реакторних матеріалів за допомогою прискорювального мас-спектрометра ІПФ НАН України.

2. Джерело іонів та прискорювач

Прискорювальний мас-спектрометр (ПМС) AMS-1MV Tandetron ІПФ НАН України детально описано в роботах [2 - 8], тому подамо лише короткий опис цієї установки.

Установка розміщена у приміщенні $9 \times 9 \text{ м}^2$, обладнаному системою клімат-контролю, витяжною вентиляцією, системою замкнутого водяного охолодження, системою витяжки їдких газів, системою осушки і регенерації ізолюючого газу SF_6 [9], системою контролю SF_6 та іншим необхідним обладнанням (рис. 1).

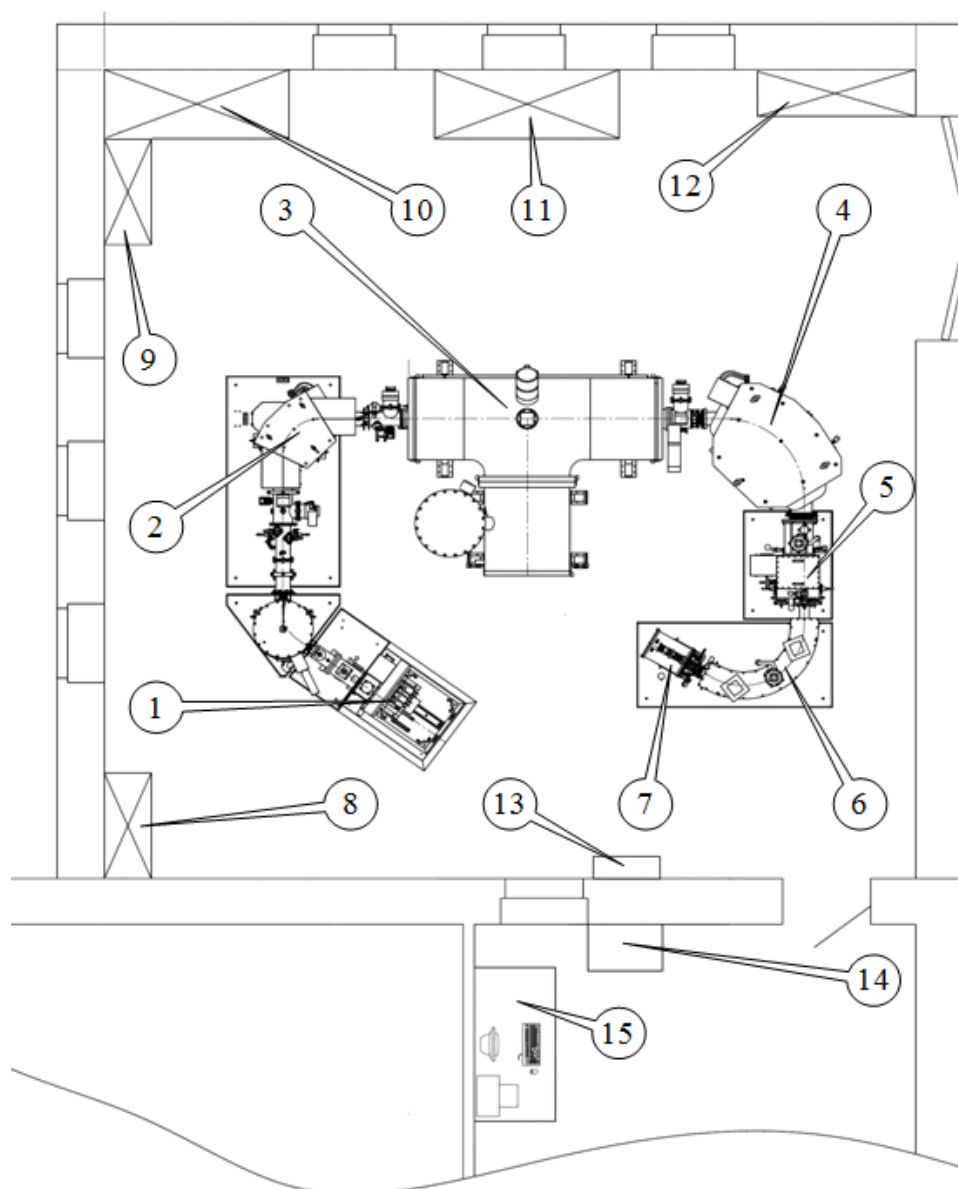


Рис. 1. Схема розміщення обладнання в ІАНФ НАН України: 1 – цезієве джерело негативних іонів з каруселлю на 50 проб; 2 – розподільний магніт з електростатичним переключенням пучка; 3 – прискорювач; 4 – диспергуючий магніт; 5 – блок колекторів; 6 – електростатичний енергоаналізатор; 7 – детектор іонів; 8 – система витяжки їдких газів; 9 – система витяжної вентиляції; 10 – система замкнутого водяного охолодження; 11 – система осушки і регенерації SF₆; 12 – система приточної вентиляції; 13 – силовий щит; 14 – стійка управління ПМС; 15 – стіл оператора ПМС.

Проба розміщується в одній з комірок 50-місної каруселі (SO100/50) цезієвого джерела іонів SNICS (Sources of Negative Ions by Cesium Sputtering). В іонному джерелі під дією потоку іонів Cs⁺ з поверхні досліджуваного зразка відбувається випаровування та іонізація речовини. Позитивно заряджені іони цезію відносно легко десорбуються з металевої поверхні при її нагріванні, забезпечуючи достатню щільність іонізуючого пучка, а крім того вони фокусуються на мішені електричним полем тієї ж полярності, яка забезпечує емісію негативних іонів з досліджуваного зразка. Тому частина вибитих із твердого зразка частинок є негативними іонами необхідного ізотопу.

Розподільний 90° магніт 2 постійного струму, камера якого може бути під змінним потенціалом ± 3 кВ, направляє пучок іонів до прискорювача 3. Частота сканування напруги до 100 Гц. Система налаштована так, що час пропускання різних іонів у прискорювач залежить від величини іонного струму. Для рідкісних ізотопів час пропускання збільшено в 100 разів у порівнянні з основним ізотопом (9,75 мс і 100 мкс відповідно).

У мас-спектрометрі використовується прискорювач 3 типу Кокрофта - Уолтона з максимальною напругою 1 МВ. Для перезарядки іонів в обдирній камері застосовується чистий аргон.

Диспергуючий магніт 4 постійного струму розділяє ізотопи за відношеннями їх маси до заряду m/q . Основні ізотопи можуть бути зареєстровані циліндрами Фарадея блока колекторів 5, рідкісні ізотопи фільтруються 120^0 енергоаналізатором 6 і аналізуються газовим $\Delta E-E$ детектором іонів (7).

3. Результати експериментів

Основною задачею нашої роботи було отримання пучка багатозарядних іонів заліза, які будуть використані для опромінення конструкційних матеріалів ядерної енергетики. Зважаючи на те, що енергія спорідненості електрона до заліза є невеликою ($-0,58$ eV), отримати необхідний струм іонного пучка, використовуючи в якості матеріалу для джерела іонів чисте залізо, неможливо. Тому в експериментах використовувався магнетит ($\text{FeO} \cdot \text{Fe}_2\text{O}_3$), що одночасно містить оксиди дво- та тривалентного заліза. Це дало

змогу оцінити перспективи використання різних оксидів для такого класу задач.

Запресований в алюмінієвий пістон порошок магнетиту опромінювався позитивними іонами цезію з енергією 7 кеВ. Потенціал на витягуючому електроді становив 21 кВ. При цьому утворювались негативні молекулярні іони $(^{56}\text{Fe}^{16}\text{O})^{-1}$, які на виході із джерела набували енергію 28 кеВ. Пучок виділених молекулярних іонів спрямовувався в тандетронний прискорювач. В обдирній камері прискорювача, наповненій аргонем до тиску 1 Па, у результаті зіткнень з атомами аргону відбувається утворення позитивних іонів заліза та кисню, що мають різний заряд.

Іонні струми детектувалися колектором, при цьому розгортка мас-спектра здійснювалася диспергуючим магнітом в діапазоні струму в обмотці від 100 до 300 А. За струму обмотки нижче 100 А іонних піків не спостерігалось. Експерименти проводилися при двох прискорюючих напругах 0,35 та 0,9 МВ (рис. 2).

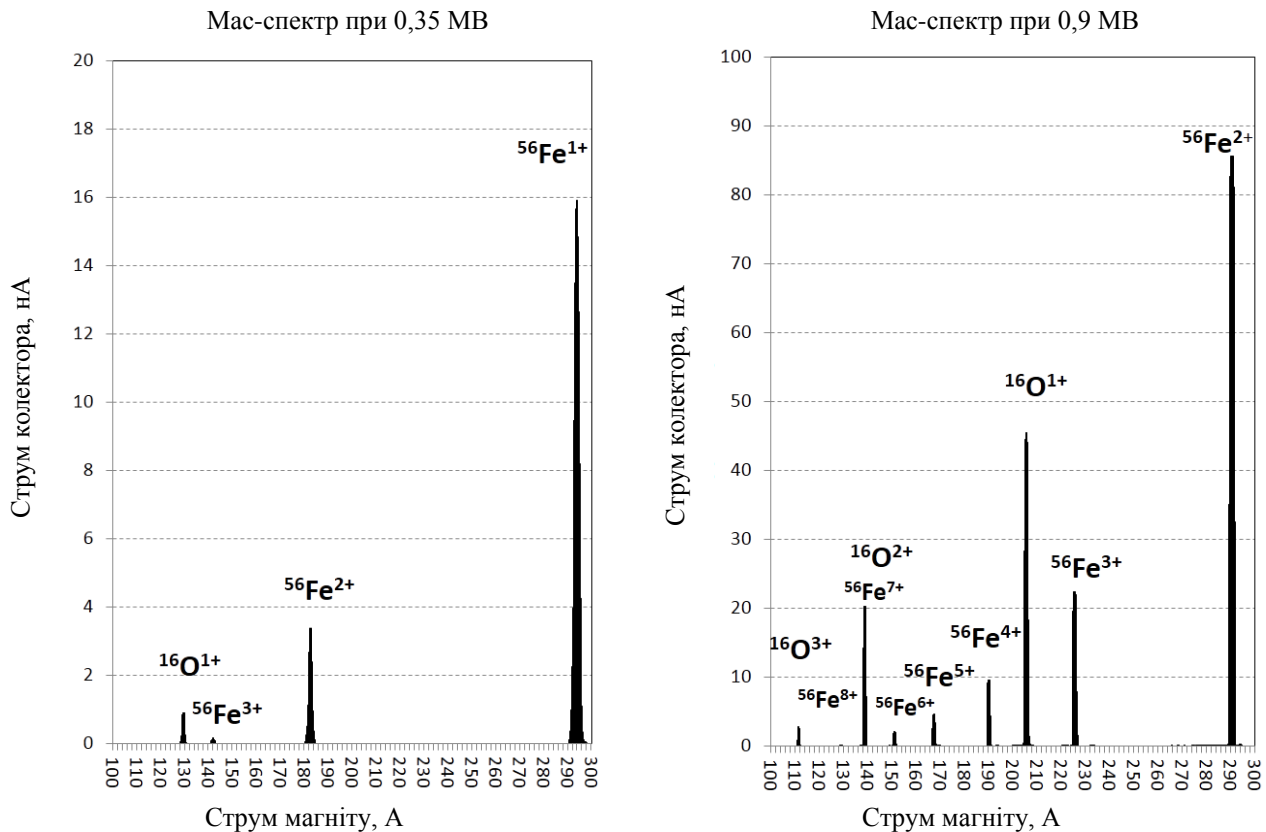


Рис. 2. Мас-спектри, отримані при прискорюючих напругах 0,35 та 0,9 МВ.

Як видно з рисунка, при прискорюючій напрузі 0,35 МВ спостерігаються три піки іонів заліза з різними зарядами включно до 3+. Також є досить інтенсивний пік іонів $^{16}\text{O}^{1+}$. Більш багатий мас-спектр спостерігається при прискорюючій напрузі 0,9 МВ. У цьому випадку енергії вистачає для утворення цілого набору багатозарядних іонів заліза до $^{56}\text{Fe}^{8+}$ включно та до $^{16}\text{O}^{3+}$ для кисню.

Детальні експериментальні результати наведено в таблицях.

4. Оцінка швидкості утворення дефектів

За параметрами пучків іонів (табл. 1) розрахуємо швидкість утворення дефектів під дією іонного опромінення. Для цього скористаємося формулою

$$K_0 = \frac{\Phi \cdot \gamma}{N},$$

де $\Phi = \frac{I}{qeS}$ – густина потоку іонів; γ – кількість

дефектів, що утворює іон на одиницю пробігу; N – атомна густина матеріалу мішені; q – зарядовий стан іонів; e – елементарний заряд; I – іонний струм на мішені; S – площа опромінення.

Таблиця 1. Результати експериментів

| Прискорююча напруга, кВ | Струм магніту, А | Розрахована магнітна індукція, Т | Струм пучка, нА | Енергія іонів, МеВ | Тип іона |
|-------------------------|------------------|----------------------------------|-----------------|--------------------|---|
| 900 | 111,4 | 0,260 | 2,76 | 2,91 | $^{16}\text{O}^{3+}$ |
| 900 | 129,0 | 0,301 | 0,12 | 7,92 | $^{56}\text{Fe}^{8+}$ |
| 900 | 138,8 | 0,324 | 20,24 <1 | 2,00 7,02 | $^{16}\text{O}^{2+}$ $^{56}\text{Fe}^{7+}$ |
| 900 | 151,0 | 0,353 | 2,08 | 6,12 | $^{56}\text{Fe}^{6+}$ |
| 900 | 167,2 | 0,391 | 4,59 | 5,22 | $^{56}\text{Fe}^{5+}$ |
| 900 | 190,2 | 0,445 | 9,55 | 4,32 | $^{56}\text{Fe}^{4+}$ |
| 900 | 205,6 | 0,481 | 45,49 | 1,11 | $^{16}\text{O}^{1+}$ |
| 900 | 225,4 | 0,528 | 22,32 | 3,42 | $^{56}\text{Fe}^{3+}$ |
| 900 | 290,6 | 0,680 | 85,64 | 2,52 | $^{56}\text{Fe}^{2+}$ |
| 350 | 129,4 | 0,303 | 0,9 | 0,43 | $^{16}\text{O}^{1+}$ |
| 350 | 141,8 | 0,330 | 0,17 | 1,34 | $^{56}\text{Fe}^{3+}$ |
| 350 | 182,6 | 0,427 | 3,39 | 0,99 | $^{56}\text{Fe}^{2+}$ |
| 350 | 293,6 | 0,686 | 15,92 | 0,64 | $^{56}\text{Fe}^{1+}$ |

Візьмемо іонний струм (Fe^{2+}) $I = 85,64$ нА з табл. 1 та скористаємося програмним пакетом SRIM [10] для знаходження величини γ . Для енергії іонів заліза 2,52 МеВ, що опромінюють зразок заліза $\gamma = 2,1 \cdot 10^4$ дефектів/(іон·мкм).

Таким чином, для площі опромінення $S = 25$ мм², $K_0 = 2,7 \cdot 10^{-3}$ зна/с.

Для інших багатозарядних іонів були розраховані швидкості утворення дефектів, наведені в табл. 2.

Таблиця 2. Розрахункові значення швидкості продукування дефектів

| Тип іона | Енергія іонів, МеВ | Струм пучка, нА | Пробіг іонів, мкм | γ , дефектів/(іон·мкм) | K_0 зна/с |
|-----------------------|--------------------|-----------------|-------------------|-------------------------------|----------------------|
| $^{56}\text{Fe}^{2+}$ | 2,52 | 85,64 | 1 | $2,1 \cdot 10^4$ | $2,70 \cdot 10^{-3}$ |
| $^{56}\text{Fe}^{3+}$ | 3,42 | 22,32 | 1,5 | $1,6 \cdot 10^4$ | $3,54 \cdot 10^{-4}$ |
| $^{56}\text{Fe}^{1+}$ | 0,64 | 15,92 | 0,525 | $2,0 \cdot 10^4$ | $9,34 \cdot 10^{-4}$ |
| $^{56}\text{Fe}^{2+}$ | 0,99 | 3,39 | 0,721 | $1,9 \cdot 10^4$ | $9,45 \cdot 10^{-5}$ |

Розраховані значення швидкості продукування дефектів надалі використовуються при моделюванні концентраційних профілів елементів у багатокомпонентних сплавах [11].

5. Висновки

Параметри пучків багатозарядних іонів, одержаних на прискорювальному мас-спектрометрі, дозволяють забезпечити потрібну для проведення імітаційних експериментів швидкість дефектоутворення в діапазоні $10^{-4} \div 10^{-2}$ зна/с.

СПИСОК ВИКОРИСТАНОЇ ЛІТЕРАТУРИ

1. В.Н. Воеводин, И.М. Неклюдов. *Эволюция структурно-фазового состояния и радиационная стойкость конструкционных материалов* (К.: Наук. думка, 2006) 376 с.
2. D.E. Nelson, R.G. Korteling, W.R. Stott. Carbon-14: Direct Detection at Natural Concentrations. *Science* 198(4316) (1977) 507.
3. J. Chen et al. Development of Accelerator Mass Spectrometry and Its Applications. *Rev. Accel. Sci. Technol.* 4 (2011) 117.
4. M. Suter, St. Jacob, H.-A. Synal. AMS of ^{14}C at low energies. *Nucl. Instr. Meth. B* 123(1 - 4) (1997) 148.
5. H.-A. Synal, S. Jacob, M. Suter. The PSI/ETH small radiocarbon dating system. *Nucl. Instr. Meth. B* 172(1 - 4) (2000) 1.
6. A.M. Muller et al. ^{10}Be AMS measurements at low energies ($E < 1$ MeV). *Nucl. Instr. Meth. B* 266(10) (2008) 2207.
7. B.J. Hughey et al. Low-energy biomedical GC-AMS system for ^{14}C and ^3H detection. *Nucl. Instr. Meth. B* 172(1 - 4) (2000) 40.
8. В.Б. Москаленко и др. Состояние и перспективы развития центра ускорительной масс-спектрометрии Института прикладной физики НАН

- України. *Наука та інновації* 10(2) (2014) 8.
9. І.Г. Чижов та ін. Спосіб технічного обслуговування високовольтних пристроїв з елегазовою (SF_6) ізоляцією. Патент UA № 106430. Опубліковано 26.08.2014, бюл. № 16/2014.
 10. J.F. Ziegler. *The Stopping and Range of Ions in Matter (SRIM)*.
 11. G.S. Was. *Fundamentals of Radiation Materials Science: Metals and Alloys* (Berlin, Heidelberg: Springer-Verlag, 2007) 827 p.

В. Б. Москаленко*, А. Н. Бугай, В. Л. Денисенко

Інститут прикладної фізики НАН України, Суми, Україна

*Ответственный автор: moskalenko@ipflab.sumy.ua

ПОЛУЧЕНИЕ ПУЧКОВ МНОГОЗАРЯДНЫХ ИОНОВ ЖЕЛЕЗА ^{56}Fe С ЭНЕРГИЕЙ 0,64 - 7,92 МэВ ДЛЯ ОБЛУЧЕНИЯ КОНСТРУКЦИОННЫХ МАТЕРИАЛОВ

Рассматривается возможность создания пучка многозарядных ионов железа в ускорительном масс-спектрометре Института прикладной физики НАН Украины с целью имитационного облучения реакторных материалов и их исследования под действием облучения. Масс-спектр ускоренных ионов демонстрирует наличие в нем ионов железа различных зарядовых состояний (до $^{56}\text{Fe}^{8+}$). Хотя ионный ток уменьшается с увеличением зарядового состояния, многозарядные ионы могут быть использованы для облучения образцов в тех случаях, когда задача требует большей энергии ионов. Показано, что скорость образования дефектов в образце железа, облучаемом ионами $^{56}\text{Fe}^{2+}$ с энергией 2,52 МэВ, составляет $2,7 \cdot 10^{-3}$ сна/с.

Ключевые слова: пучок, облучение, многозарядный ион, ионы железа, масс-спектр, сна/с.

V. B. Moskalenko*, O. M. Buhay, V. L. Denysenko

Institute of Applied Physics, National Academy of Sciences of Ukraine, Sumy, Ukraine

*Corresponding author: moskalenko@ipflab.sumy.ua

PRODUCTION OF BEAMS OF MULTI-CHARGED IRON IONS ^{56}Fe WITH ENERGY 0.64 - 7.92 MeV FOR IRRADIATION OF CONSTRUCTION MATERIALS

In the paper, a possibility of multiply charged ^{56}Fe ions beams formation for imitation irradiation of reactor materials with using the IAP NASU accelerator mass spectrometer is considered. There are iron ions of various charge states (up to $^{56}\text{Fe}^{8+}$) in obtained mass spectra. Despite of the ion current decreases with increasing charge state, multicharged ions can be used to irradiate specimens when larger ion energy is required. It is shown defect formation rate for ^{56}Fe sample irradiated by $^{56}\text{Fe}^{2+}$ ions with energy 2.52 MeV is $2.7 \cdot 10^{-3}$ dpa/s.

Keywords: beam, irradiation, multiply charged ion, iron ions, mass spectrum, dpa/s.

REFERENCES

1. V.N. Voyevodin, I.M. Neklyudov. *Evolution of the Structure-Phase State and Radiation Resistance of Structural Materials* (Kyiv: Naukova dumka, 2006) 376 p. (Rus)
2. D.E. Nelson, R.G. Korteling, W.R. Stott. Carbon-14: Direct Detection at Natural Concentrations. *Science* 198(4316) (1977) 507.
3. J. Chen et al. Development of Accelerator Mass Spectrometry and Its Applications. *Rev. Accel. Sci. Technol.* 4 (2011) 117.
4. M. Suter, St. Jacob, H.-A. Synal. AMS of ^{14}C at low energies. *Nucl. Instr. Meth. B* 123(1 - 4) (1997) 148.
5. H.-A. Synal, S. Jacob, M. Suter. The PSI/ETH small radiocarbon dating system. *Nucl. Instr. Meth. B* 172(1 - 4) (2000) 1.
6. A.M. Muller et al. ^{10}Be AMS measurements at low energies ($E < 1$ MeV). *Nucl. Instr. Meth. B* 266(10) (2008) 2207.
7. B.J. Hughey et al. Low-energy biomedical GC-AMS system for ^{14}C and ^3H detection. *Nucl. Instr. Meth. B* 172(1 - 4) (2000) 40.
8. V.B. Moskalenko et al. State and development prospects of the accelerator mass-spectrometry center of the Institute of Applied Physics of the National Academy of Sciences of Ukraine. *Nauka ta Innovatsiyi* 10(2) (2014) 8. (Rus)
9. I.G. Chizhov et al. Method of maintenance of high-voltage devices with SF_6 insulation. Patent UA No. 106430. Published on 08.26.2014, Bul. No. 16/2014. (Ukr)
10. J.F. Ziegler. *The Stopping and Range of Ions in Matter (SRIM)*.
11. G.S. Was. *Fundamentals of Radiation Materials Science: Metals and Alloys* (Berlin, Heidelberg: Springer-Verlag, 2007) 827 p.

Надійшла/Received 16.01.2020