

ОСОБЕННОСТИ ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ УСКОРЕННЫХ ТЯЖЕЛЫХ ИОНОВ С ПОЛИМЕРНЫМИ ПЛЕНКАМИ

Г.С. Жданов¹⁾, Т.А. Красавина¹⁾, Б.И. Белоусов²⁾, А.Б. Белоусов²⁾

¹⁾ Государственный научный центр РФ «Физико-энергетический институт имени академика А.И. Лейпунского», 249033, пл. Бондаренко, 1, Обнинск, Россия, тел./факс (7-084-39-)9-80-32, e-mail zhdanov@ippe.obninsk.ru

²⁾ Научно-производственная фирма «ОКТО», Москва, Россия, тел./факс (7-095)403-08-59, e-mail okto@aha.ru

Установлено, что с увеличением флюенса скорость химического травления треков растет, причем для пленки, облученной осколками деления более резко, чем для пленки, облученной ионами аргона. Однако, начиная с флюенса $\sim 5 \cdot 10^7 - 1 \cdot 10^8 \text{ см}^{-2}$ рост скорости травления существенно замедляется, т.е. скорость химического травления имеет экстремальный характер. Среднее расстояние между треками при этих флюенсах облучения составляет $\sim 1,0 - 1,4 \text{ мкм}$. Показано, что увеличение скорости химического травления треков с ростом флюенса обусловлено взаимным влиянием ионов друг на друга, причем это влияние становится существенным уже на расстояниях $\sim 0,5 - 0,7 \text{ мкм}$ от оси трека тяжелого иона. Необходимо предположить, что наряду с повреждениями полимера, вызванными радиационными потерями энергии тяжелого иона, оказывают влияние сопутствующие прохождению тяжелых ионов через вещество физические факторы. Рассмотрены возможные механизмы передачи энергии на большие расстояния от оси трека: а) перенос энергии за счет вторичных электронов; б) передача энергии возбуждения и зарядов на большие расстояния; в) миграция из зоны трека низкомолекулярных активных частиц и их последующие реакции в околотрековом пространстве; г) возникновение и распространение продольных микроударных волн.

Введение

В последнее время появились экспериментальные данные, указывающие на изменения в свойствах полимера на расстояниях $\sim 0,2 - 0,3 \text{ мкм}$ и более от оси трека иона, приводятся результаты наблюдения латентных треков в полимерах методом атомно-силовой микроскопии, свидетельствующие о размерах латентных треков, существенно превышающих общепринятые [1,2]. Высказано предположение, что при больших плотностях облучения полимера ионами (порядка 10^{11} ион/см^2 и более) латентные треки влияют друг на друга путем «уплотнения» структуры полимера уже существующих треков при образовании близлежащего латентного трека (модель «ударных волн»). В работе исследовано взаимное влияние треков при облучении полимера ионами и осколкам деления урана путем наблюдения за изменением скорости травления треков при увеличении плотности облучения.

Методика эксперимента

Использовали тонкие полиэтилентерефталатные пленки $\sim 8 - 10 \text{ мкм}$, облученные ионами аргона с энергией $\sim 1 \text{ МэВ/нуклон}$ и осколками деления урана. Флюенс меняли в диапазоне $1 \cdot 10^6 - 3 \cdot 10^9 \text{ см}^{-2}$. После облучения пленки подвергали УФ-сенсibilизации в течении 30 мин. Травление обработанных образцов проводили в 1N растворе NaOH при 80° C . Размер пор определялся методом «точки пузырька». Выход терефталат-ионов контролировали спектрофотометрически на длине волны $\sim 245 \text{ нм}$. Среднюю скорость травления определяли по формуле: $V = r / t$, где r – радиус поры, измеренный методом «точки пузырька», t – время травления.

Экспериментальные результаты и их обсуждение

Из таблиц и рисунков видно, что радиальная скорость химического травления пленок для всех флюенсов увеличивается по мере удаления от оси трека (т.е. с увеличением диаметра пор), а при одинаковых расстояниях от оси трека в среднем она выше для пленок,

Таблица 1
Скорость химического травления пленок, облученных ионами аргона

Флюенс, см^{-2}	Время, мин	Радиус, нм	Скорость, нм/сек
$4 \cdot 10^6$	25	107	0,07
	22	774	0,06
	18	50	0,05
	15	29	0,03
$3 \cdot 10^7$	25	135	0,09
	22	117	0,09
	18	82	0,08
	15	58	0,06
$6 \cdot 10^7$	12	30	0,04
$6 \cdot 10^7$	20	103	0,09
	17	77	0,08
	14	61	0,07
	10	24	0,04
$1 \cdot 10^8$	20	125	0,10
	18	108	0,09
	15	67	0,07
	12	32	0,05
	10	26	0,04

облученных большими флюенсами. Однако с дальнейшим увеличением флюенса скорость химического травления замедляется. Следует заметить, что с увеличением массы иона эти тенденции проявляются более отчетливо (сравнение осколков деления урана и ионов аргона).

Таблица 2
Скорость химического травления пленок,
облученных осколками деления урана

Флюенс, см ⁻²	Время, мин	Радиус, нм	Скорость, нм/сек
1*10 ⁸	48	150	0,05
	35	130	0,06
	30	110	0,06
	25	70	0,05
	20	53	0,04
2*10 ⁷	35	164	0,08
	30	130	0,07
	25	108	0,07
	20	83	0,07
	15	55	0,06
1*10 ⁸	20	115	0,10
	17	99	0,10
	15	79	0,09
	12	66	0,09
	9	26	0,04
5*10 ⁸	9	35	0,06
	8	30	0,06
	7	26	0,06

Оценки показывают, что взаимное влияние треков на скорость химического травления проявляется уже при флюенсах $\sim 10^7$ см⁻². Среднее расстояние между треками при этих флюенсах облучения составляет $\sim 1,0$ - $1,4$ мкм, что соответствует расстоянию $\sim 0,5$ - $0,7$ мкм от оси трека тяжелого иона.

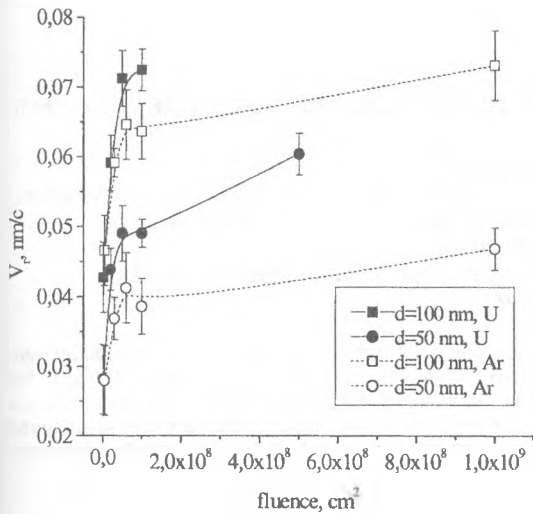


Рис. 1. Зависимость скорости травления пор от флюенса

Таким образом, физико-химические изменения в полимере наблюдаются на anomalно больших расстояниях от оси трека тяжелого иона. Полученные результаты свидетельствуют в пользу дальнего действия механизма передачи энергии при взаимодействии ускоренных тяжелых ионов с полимером.

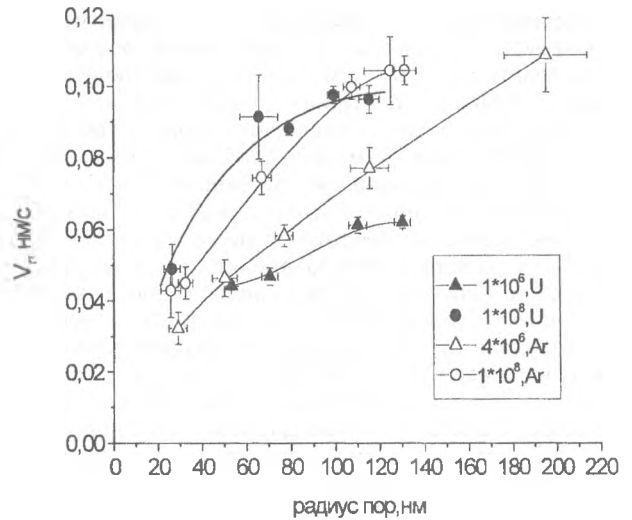


Рис. 2. Сравнение скоростей травления для пленок, облученных осколками деления U и Ar

Существующие в настоящее время модели формирования латентных треков в полимерах (модель «ионного взрыва», теплового клина, ряд моделей, основанных на рассмотрении энергетических потерь – ЛПЭ, первичной ионизации, ограниченных по радиусу потерь, потерь энергии за счет вторичных электронов и др.) объясняют само явление образования треков, но не позволяют адекватно описать многие экспериментальные результаты. Рассмотрим более подробно возможные механизмы передачи энергии на большие расстояния от оси трека.

Из радиационных воздействий наиболее вероятным дальнедействующим механизмом является перенос энергии за счет вторичных электронов.

Хотя отдельные электроны (с максимальной энергией) и могут уносить энергию на расстояние десятков и сотен нанометров, но вклад их общую поглощенную дозу будет слишком мал. Из других механизмов, способных вынести энергию на большие расстояния из зоны трека могут рассматриваться: а) передача энергии возбуждения и зарядов на большие расстояния; б) миграция из зоны трека низкомолекулярных активных частиц и их последующие реакции в околотрековом пространстве. Однако, по ряду причин, их вклад в деградацию полимера не является существенным. Прежде всего потому, что концентрация промежуточных активных частиц и возбужденных состояний молекул в сердцевине трека и прилегающем объеме будет настолько велика, что наиболее вероятным процессом будет аннигиляция возбужденных состояний, а также рекомбинация зарядов и свободных радикалов. Нам представляется, что доминирующий вклад в деградацию свойств полимера в околотрековом пространстве вносят не учитываемые и не рассматриваемые в принятых моделях физические факторы, которые сопровождают прохождение ускоренного иона через полимер. На наш взгляд, определяющую роль в повреждении полимера в околотрековом

пространстве оказывают продольные микроударные волны. По различным оценкам, температура в треке (адиабатическое приближение) достигает ~60-70 тыс. °C, а вызванный ею скачок давления на фронте волны - ~100-200 кбар. Методом ЭПР по ориентации пероксидных макрорадикалов (жестко связанных с полимерными цепями) было показано, что в этом случае распространяются упругие продольные волны в радиальном направлении от оси трека, а также по направлению движения тяжелого иона, которые ориентируют полимерные цепи, выстраивая их по направлению распространения волны. Разумно предположить, что в местах сжатия и расширения полимера при распространении микроударных волн могут происходить термомеханические реакции, приводящие к деградации полимера далеко за пределами зоны трека. Предлагаемая концепция объясняет целый ряд экспериментальных результатов по превращению полимера на аномально больших расстояниях от оси трека (до 0,3-0,5 мкм) и не противоречит существующим моделям формирования латентных треков в полимерах.

Приведем факты, подтверждающие справедливость разрабатываемых модельных представлений. Проведенные эксперименты влияния температуры отжига треков в полиэтилентерефталате (ПЭТФ) показали, что образование латентных треков - процесс обратимый. Латентные треки в ПЭТФ «залечиваются», т.е. поврежденный полимер восстанавливается, что не может происходить

при повреждениях полимера, вызванных радиационно-химическими реакциями. В этом случае с повышением температуры за счет термоокислительной деструкции повреждения в полимере должны только усиливаться. Другой пример, по законам классической радиационной химии полимеров с понижением температуры (отрицательная область) скорость всех радиационно-химических процессов существенно замедляется. Облучение же тяжелыми ионами при температуре 100-150 К различных по свойствам полимеров приводит к более глубокому их превращению по сравнению с облучением при более высоких температурах ~300 К. Наблюдаемые явления разумно объяснить с точки зрения протекания термомеханических реакций, вызванных прохождением микроударных волн.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований и Правительства Калужской области (грант № 03-03-96288).

Список литературы

1. Жданов Г. С., Апель П. Ю., Щукина О. С., Клишпонт Э. Р., Мchedlishvili Б. В., Милинчук В. К. // Химия высоких энергий. - 1993. - Т. 27. - № 5. - С. 42.
2. Rozlosnik N., Sajo Bohus L., Birattari C., Gadioli E., Biro L. P. and Havancsak K. // Nanotechnology. - 1997. - V. 8. - P.32-34.

FEATURES OF INTERACTION OF THE ACCELERATED HEAVY IONS WITH POLYMERIC FILMS

G.S. Zhdanov¹, T.A. Krasavina¹, B.I. Belousov², A.B. Belousov²

¹The State Scientific Center of Russian Federation «Institute for Physics and Power Engineering name after Acad. A.I. Leipunsky», 249033, sq. Bondarenko, 1, Obninsk, Russia, tel. / fax: 7- (08439)-9-80-32, e-mail: zhdanov@ippe.obninsk.ru

²Scientific and Production Company "OKTO", Moscow, Russia, tel. / fax: 7- (095)-403-08-59, e-mail: okto@aha.ru

It was established, that with increase of fluence the speed of chemical etching of tracks grows, and for a film irradiated with uranium fission fragments sharper, than for a film irradiated with argon ions. However, since fluence $\sim 5 \cdot 10^7 - 1 \cdot 10^8 \text{ sm}^{-2}$ the growth of speed of etching is essentially slowed down, i.e. the speed of chemical etching has extreme character. Average distance between tracks at these fluences of an irradiation makes $\sim 1,0 - 1,4$ microns. It was shown, that the increase of speed of chemical etching of tracks with growth fluence is caused by mutual influence of ions against each other, and this influence becomes essential already on distances $\sim 0,5 - 0,7$ microns from an axis of a track of a heavy ion. It is necessary to assume, that alongside with damages of polymer caused radiating losses of energy of a heavy ion, render influence accompanying to passage of heavy ions through substance the physical factors. The possible mechanisms of transfer of energy on the large distances from an axis of a track are considered: a) carry of energy at the expense of secondary electrons; b) transfer of energy of excitation and charges on the large distances; c) migration from a zone of a track the active particles and their subsequent reactions in the 'near-track' space; d) occurrence and distribution of longitudinal shock waves.