

铝中气泡在电子束辐照下的异常放热现象

杜玉峰 崔丽娟 李金升 李然然 万发荣

Anomalous heat-releasing phenomenon from bubbles in aluminum induced by electron beam irradiation

Du Yu-Feng Cui Li-Juan Li Jin-Sheng Li Ran-Ran Wan Fa-Rong

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 67, 216101 (2018) DOI: 10.7498/aps.67.20181140

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.67.20181140>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2018/V67/I21>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

纳米材料及 HfO₂ 基存储器件的原位电子显微学研究

In situ transmission electron microscopy studies on nanomaterials and HfO₂-based storage nanodevices

物理学报.2018, 67(12): 126802 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.67.20180731>

电子束辐照下的注氘铝的结构变化

The change of microstructure in deuterium-implanted aluminum under electron irradiation

物理学报.2016, 65(2): 026102 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.026102>

Cu/Al 引线键合界面金属间化合物生长过程的原位实验研究

In-situ investigation on the growth of Cu-Al intermetallic compounds in Cu wire bonding

物理学报.2015, 64(21): 216804 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.216804>

高功率脉冲电子束辐照 SiO₂ 的光学和激光损伤性能

Optical properties and laser damage performance of SiO₂ irradiated by high-power pulsed electron beam

物理学报.2014, 63(24): 246103 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.246103>

基于镍-63 硅基辐伏能量转换结构初探

Investigation of a energy conversion silicon chip based on ⁶³Ni radio-voltaic effect

物理学报.2012, 61(17): 176101 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.61.176101>

铝中气泡在电子束辐照下的异常放热现象*

杜玉峰 崔丽娟 李金升 李然然 万发荣†

(北京科技大学材料科学与工程学院材料物理与化学系, 北京 100083)

(2018年6月11日收到; 2018年7月21日收到修改稿)

在室温下, 利用离子加速器对纯铝透射样品分别注入 He^+ , Ne^+ 和 Ar^+ 三种惰性气体离子, 通过透射电子显微镜原位观察分析了纯铝中三种气体气泡在电子束辐照下形貌及电子衍射花样的变化. 实验表明, 在 200 keV 电子束辐照下, 三种惰性气体气泡均会合并长大, 亮度逐渐增强, 最终破裂, 气泡内部产生许多约几个纳米的黑色斑点衬度像, 选区电子衍射花样由单晶斑点衍射花样变为多晶衍射环. 这一现象的原因可能是气泡在电子束辐照过程中发生了放热反应, 使气泡附近铝熔化后再结晶产生多晶, 从而在电子衍射花样中观察到了多晶衍射环. 然而, 氦气泡在 80 keV 电子束辐照下氦气泡形貌和选区电子衍射花样保持不变, 辐照后衍射花样中无多晶衍射环产生; 氦氩混合气体气泡在 200 keV 电子束辐照下气泡形貌和选区电子衍射花样同样保持不变; 这可能与电子束能量和气泡内气体压力有关.

关键词: 惰性气体气泡, 铝, 电子束辐照, 多晶衍射环

PACS: 61.80.Fe, 68.37.Lp, 61.80.-x

DOI: 10.7498/aps.67.20181140

1 引言

核反应堆环境中存在的大量气体离子进入材料时, 会在材料内部产生气泡, 使材料性能退化, 进而失效^[1]. 为了研究气泡在固体材料中形核、长大及演化机制, 不少学者利用加速器将气体离子注入固体材料中形成气泡, 然后在透射电子显微镜 (transmission electron microscope, TEM) 下进行观察, 发现了很多有趣的实验现象, 例如: 气泡超晶格、固态气泡和超高压气泡等^[2-6]. 日本学者 Kinoshita 等^[7-9] 将氦离子注入纯铝中, 在进行 TEM 观察时, 发现在对隧道状氦泡短时间会聚电子束辐照后的瞬间, 氦气泡周围的铝由单晶变成多晶, 而同样对注氢纯铝中形成的隧道结构的氢气泡组织进行电子束辐照, 则不会观察到上述多晶化现象. Kamada 等^[8-10] 认为氦气泡内的氦原子发生了核聚变反应, 反应所放出的热量使得氦气泡表面的固态铝发生熔化, 而这些熔化铝再次凝固

时, 就出现了多晶. 本课题组李杰等^[11,12] 在验证 Kinoshita 等^[7-9] 的实验时发现, 不仅注氦铝在电子束辐照后会出现多晶化, 在注氢铝中也同样可以观察到这种电子束辐照引起的多晶化现象, 从而证实了导致气泡附近纯铝出现多晶化的原因并不是氦-氦核聚变, 但是其机理仍然不明确. 此外, 其他气体 (例如 He, Ne, Ar 等惰性气体) 在电子束辐照下是否也会出现类似的实验现象, 电子束辐照在此过程中的作用, 电子束能量对该实验结果的影响等许多问题尚不明了. 本文目的在于研究纯铝中的惰性气体气泡在电子束辐照时的气泡演化以及辐照前后电子衍射花样变化, 进一步探寻气体离子种类、电子束加速电压以及铝中气泡内气压对电子束辐照下发生异常放热现象的影响.

2 实验

实验样品采用纯度为 99.999%, 厚度为 0.1 mm 的纯铝片. 首先使用冲样机将实验样品冲成直径为

* 国家自然科学基金 (批准号: 11875085, 59971010) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: wanfr@mater.ustb.edu.cn

3 mm 的小圆片; 然后利用电解双喷仪制备成 TEM 用薄膜样品, 双喷条件为电压 18 V, 温度 $-25\text{ }^{\circ}\text{C}$ 左右, 电解液为 25% 的硝酸 + 75% 的甲醇溶液 (体积分数). 将制备好的纯铝透射样品装入自行设计的纯铜样品架中, 之后将样品架固定在离子加速器的靶室内壁上, 在室温下分别注入 He^+ , Ne^+ 和 Ar^+ 三种离子. 离子注入的具体参数见表 1. 利用 SRIM 软件分别计算了 He^+ , Ne^+ 和 Ar^+ 三种离子注入后, 离子在铝样品中的分布, 如图 1 所示. 纯铝样品在加速电压为 200 kV 的 TEM 下能够观察的厚度极限约为 250 nm^[13], 能量为 30 keV 的 He^+ 在铝透射样品中分布的峰值约在 250 nm 处, 50 keV 的 Ne^+ 在铝透射样品中分布的峰值约在 100 nm, 190 keV 的 Ar^+ 在铝样品中分布的峰值约在 200 nm, 均在 TEM 能够观察的厚度范围内. 在 TEM 下根据厚度条纹 (衍射矢量 $g = (111)$) 时的消光距离 $\xi_{g111} = 70\text{ nm}$, 消光条纹数目 2—3 个, 测得样品观察区域厚度在 140—210 nm. 将离子注入后的样品放入液氮内保存, 以减少由于室温下的扩散而引起样品内气体的逃逸. 最后采用 TEM 对离子注入后的样品在室温下进行电子束辐照, 同时进行原位观察.

表 1 离子注入具体参数
Table 1. Parameters of ions implantation.

离子	能量/keV	剂量/ion·cm ⁻²	电流/ μA	时间/h	温度
He^+	30	1×10^{17}	0.6	3	室温
Ne^+	50	2×10^{16}	1.1	3	室温
Ar^+	190	1×10^{16}	10	2	室温

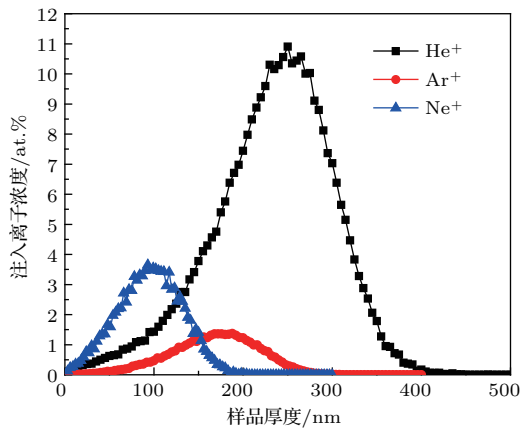


图 1 SRIM 计算得到的铝中注入离子随样品厚度的分布
Fig. 1. Distribution of ions implanted in aluminum versus sample thickness calculated by SRIM.

3 结果与讨论

能量为 30 keV, 剂量为 $1 \times 10^{17}\text{ ion/cm}^2$ 的 He^+ 注入纯铝中后, 样品在型号为 FEI-Tecnai F20 的 TEM 下, 使用能量为 200 keV 电子束辐照并观察氦气泡形貌及辐照前后选区电子衍射花样的变化, 实验结果如图 2 所示. 图 2(a) 为电子束辐照前的形貌, 纯铝样品经过 He^+ 注入后会产生大量的氦气

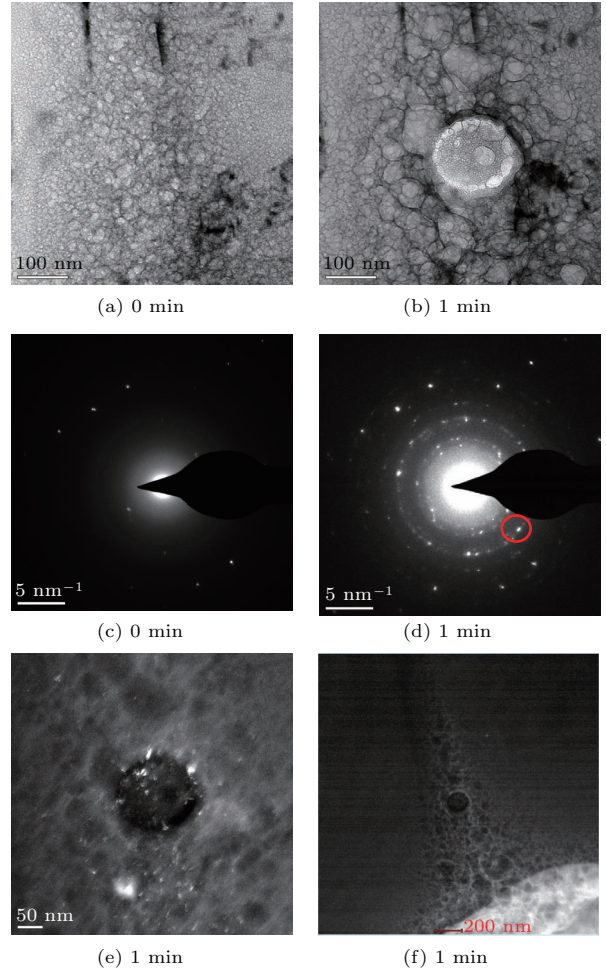


图 2 注 He^+ 铝中氦气泡在 200 keV 电子束辐照前后选区形貌和电子衍射花样的变化 (a) 辐照前形貌; (b) 辐照后的形貌; (c) 辐照前选区电子衍射花样; (d) 辐照后选区电子衍射花样; (e) 辐照后暗场像; (f) 辐照后 STEM 像

Fig. 2. Changes of morphologies and selected-area electron diffraction patterns in He^+ implanted aluminum under 200 keV electron beam irradiation: (a) morphology before electron beam irradiation; (b) morphology after electron beam irradiation; (c) electron diffraction pattern before electron beam irradiation; (d) electron diffraction pattern after electron beam irradiation; (e) dark field image after electron beam irradiation; (f) STEM image after electron beam irradiation.

泡, 观察区域气泡尺寸大概在 25—30 nm. 图 2(b) 为电子束辐照 1 min 之后的形貌, 辐照过程中电子束斑约为 200 nm, 从图中可以清晰地看到电子束辐照区域氦气泡相互融合变大, 亮度逐渐增强, 最终有的气泡破裂, 并且气泡内部产生许多小气泡和黑色斑点, 小气泡和黑色斑点的尺寸为 1—3 nm; 图中小气泡位于大气泡的里面, 只是样品厚度方向重叠的结果, 即小气泡与大气泡处于样品不同的深度处. 此外, 辐照区域附近的氦气泡尺寸也变大, 约为 70 nm. 与此同时, 选区电子衍射花样从辐照前 (图 2(c)) 的单晶斑点衍射花样转变为辐照后 (图 2(d)) 多晶环状衍射花样, 图 2(d) 多晶的衍射环由许多衍射斑点组成, 与非晶的线状衍射环 [14] 有明显的区别, 因此可以确定观察区域由单晶变为多晶. 为了确定电子束辐照后衍射花样中的多晶衍射环对应的物相, 在 TEM 下利用物镜光阑选取多晶环的衍射斑点 (图 2(d) 圆圈所示) 成像, 得到电子束辐照区域的暗场像如图 2(e) 所示, 可以看出明场像 (图 2(b)) 中的小黑点和黑斑对应暗场像中的亮点和亮斑, 也就是说辐照后产生的这些黑色斑点导致了多晶衍射环的产生. 图 2(f) 为辐照区域的扫描透射电镜 (scanning transmission electron microscope, STEM) 图像, STEM 图像是质厚衬度像, 右下角有一白色区域, 这是由于透射样品小孔边缘发生卷曲、比较厚, 在 STEM 模式下就是白色衬度. 对比明场像和 STEM 像, 发现明场像中亮白色电子束聚焦辐照区域在 STEM 模式下衬度显得更暗, 说明电子束辐照区域样品厚度变薄了, 这可能是由电子束辐照氦气泡产生的放热反应, 导致气泡所在区域熔化造成该区域样品的薄厚不均.

纯铝中分别注入 190 keV 的 Ar^+ 和 50 keV Ne^+ 后, 在能量为 200 keV 的电子束辐照前后形貌和电子衍射花样如图 3 所示. 与上述氦气泡在 200 keV 的电子束辐照下的演变过程一样, 氩气泡和氖气泡在相同能量的电子束辐照下, 气泡同样合并长大, 电子束辐照过程中气泡逐渐变亮, 最终破裂, 气泡内部出现许多小黑点; 选区电子衍射由辐照前的单晶斑点衍射花样转变为多晶环状衍射花样. 所以纯铝中 He, Ne, Ar 三种惰性气体气泡在 200 keV 电子束辐照下均会发生某种异常放热反应导致辐照区的衍射花样中出现多晶衍射环.

为了确定铝中气泡在电子束辐照后产生的多晶衍射环是由纯铝产生而不是由于铝在电子束

加热效应下发生氧化生成的氧化铝导致的, 对注 Ar^+ 铝辐照后产生的衍射环进行了标定, 如图 4 所示. 由 DM3 软件测得 $R_1 = 0.2237 \text{ nm}$, $R_2 = 0.1917 \text{ nm}$, $R_3 = 0.1465 \text{ nm}$, $R_4 = 0.1282 \text{ nm}$, $R_5 = 0.1167 \text{ nm}$, 由纯铝 PDF 卡片查得标准晶面间距 $d_{111} = 0.23381 \text{ nm}$, $d_{200} = 0.20248 \text{ nm}$,

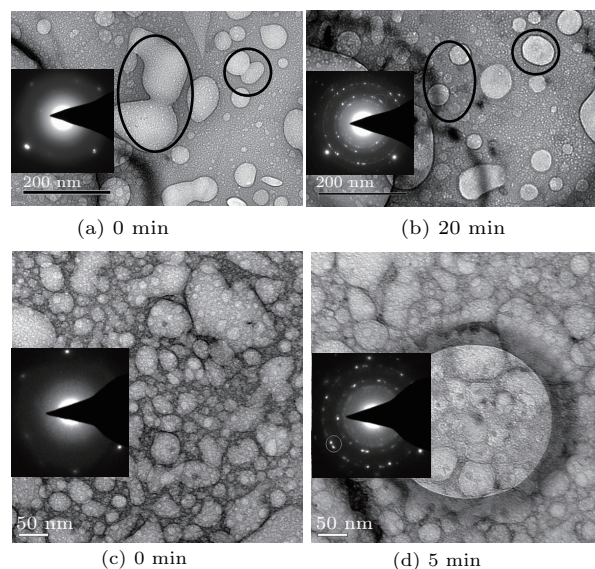


图 3 纯铝中氩气泡和氖气泡分别在 200 keV 电子束辐照下形貌及选区电子衍射花样变化 (a) 氩气泡电子束辐照前; (b) 氩气泡电子束辐照后; (c) 氖气泡电子束辐照前; (d) 氖气泡电子束辐照后

Fig. 3. Changes of morphologies and selected-area electron diffraction patterns in argon-implanted and neon-implanted aluminum under 200 keV electron beam irradiation: (a) Argon bubbles before electron beam irradiation; (b) argon bubbles after electron beam irradiation; (c) neon bubbles before electron beam irradiation; (d) neon bubbles after electron beam irradiation.

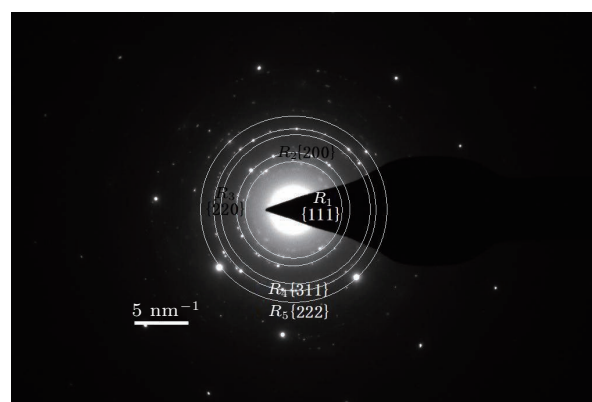


图 4 注 Ar^+ 铝电子束辐照后多晶衍射环的标定
Fig. 4. Calibration of diffraction rings of Ar^+ implanted aluminum after electron beam irradiation.

$d_{220} = 0.14318$ nm, $d_{311} = 0.1221$ nm, $d_{222} = 0.1169$ nm, 对比可知误差在5%以内, 故产生的衍射环分别对应{111}, {200}, {220}, {311}和{222}晶面族. 因此电子束辐照产生的多晶衍射环是由纯铝引起的, 并不是由电子束加热效应产生的氧化铝引起的.

注He⁺铝在型号为FEI Tecnai T20的TEM下, 使用80 keV电子束辐照并观察氦气泡形貌及辐照前后选区电子衍射花样变化, 如图5所示. 在80 keV电子束辐照下, 即使经过长达70 min辐照后, 氦气泡的形貌仍然没有明显的变化, 只是尺寸稍微变大; 辐照前后的选区电子衍射花样都是单晶斑点衍射花样. 这说明80 keV的电子束辐照不能使气泡发生放热反应而导致多晶化.

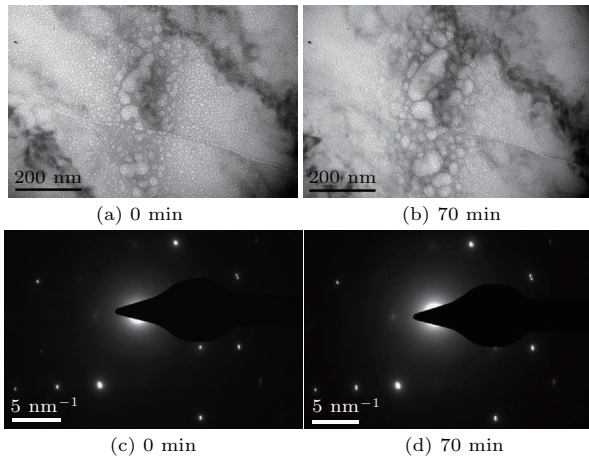


图5 注He⁺铝中氦气泡在80 keV电子束辐照前后形貌及选区电子衍射花样 (a) 辐照前的形貌; (b) 辐照后的形貌; (c) 辐照前电子衍射花样; (d) 辐照后电子衍射花样
Fig. 5. Changes of morphologies and selected-area electron diffraction patterns in helium-implanted aluminum under 80 keV electron beam irradiation: (a) TEM image before electron beam irradiation; (b) TEM image after electron beam irradiation; (c) diffraction pattern before electron beam irradiation; (d) diffraction pattern after electron beam irradiation.

纯铝中注入30 keV, 1×10^{17} ion/cm²的He⁺后, 再注入190 keV, 1×10^{16} ion/cm²的Ar⁺, 形成混合气体气泡, 在200 keV电子束辐照下形貌演变及辐照前后衍射花样的变化如图6所示. 电子束辐照前混合气体气泡呈六边形, 尺寸在50—100 nm, 而个别超大气泡尺寸达到几百纳米, 并且气泡内部有许多约几个纳米的小气泡. 经过50 min电子束辐照后, 混合气体气泡形貌和尺寸基本没有变化, 辐照前后选区电子衍射花样也没有变化, 并不会像

上述中氦气泡在200 keV电子束辐照下发生放热反应产生多晶衍射环. 一方面, 这一实验结果说明多边形氦氩混合气体气泡在电子束辐照下没有发生异常放热反应, 原因可能与气泡内的气体压力有关; 另一方面该实验结果证实了纯铝中气泡在电子束辐照下产生的多晶化现象并不是由材料的多孔性降低了导热性所造成的.

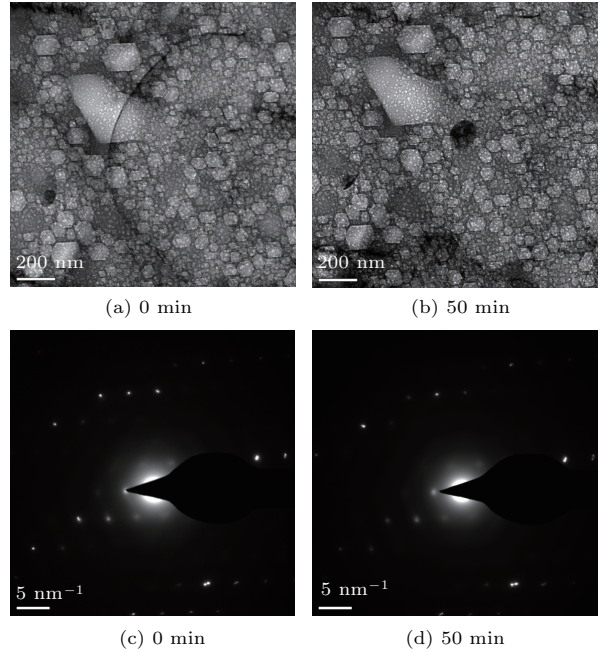


图6 注He⁺和Ar⁺的铝中混合气体气泡在200 keV电子束辐照下形貌(a), (b)及选区电子衍射花样(c), (d)
Fig. 6. Changes of morphologies (a), (b) and selected-area electron diffraction patterns (c), (d) in He⁺ and Ar⁺ implanted aluminum under 200 keV electron beam irradiation.

从上述实验结果可知, 注He⁺, Ar⁺和Ne⁺铝中的惰性气体气泡在TEM下经过200 keV电子束辐照后, 气泡会产生与注氦铝类似的实验现象, 即辐照区域选区衍射花样由单晶斑点衍射花样变为多晶环状衍射花样. 电子束辐照过程中发生了某种放热反应使气泡附近纯铝熔化后再结晶形成多晶. 然而, 与之前李杰等^[11]的纯铝中注入氢和氩实验相比, 惰性气体的注入剂量没必要达到氢和氩离子的注入剂量 5×10^{17} ion/cm². 一方面, 这是由于氢和氩离子原子质量比较轻, 而所使用离子加速器注入离子最低能量为30 keV, 大部分离子都透过铝的TEM薄膜样品, 只留下一小部分. 另一方面, 惰性气体在纯铝中不固溶^[15], 而氢和氩能够固溶在纯铝中, 甚至可能生成氢化铝^[16], 因此, 注氢和注氩实验中需要更高的离子注入剂量.

本实验注 He⁺ 铝中的氦气泡在 80 keV 电子束辐照下并不会产生多晶衍射环, 表明气泡在电子束辐照下的放热反应可能存在一个电子束的能量阈值, 在电子束能量较低时, 不足以使气泡中的高压气体发生这种放热反应.

另外, 氦氩混合气体多边形气泡在电子束辐照下同样没有观察到多晶衍射环的产生, 说明气泡内的压力对电子束辐照气泡引起的放热反应也有重要影响. 20 世纪 80 年代, 许多学者利用加速器将惰性气体注入纯铝中, 研究了固态惰性气泡的晶体结构、生长方式以及随温度的演化规律等^[17-19]. Donnelly^[4] 和 Cox 等^[20] 指出固态气泡内的压力高达 1.15—3.5 GPa. 本实验注 He⁺, Ar⁺ 和 Ne⁺ 铝中虽然没有观察到固态惰性气泡的衍射斑点, 但是上述文献^[4, 20] 也足以说明铝中的气泡是高压气体. 根据圆形气泡压力平衡方程

$$P = \frac{2\gamma}{r}, \quad (1)$$

式中 P 为气泡内压力, γ 为铝表面张力, r 为气泡半径. 计算得到直径为 20 nm 的气泡内部平衡压力为 11 MPa, 相当于 100 个大气压. 然而, 在纯铝中先注入 He⁺, 再注入 Ar⁺ 形成的氦氩混合气体气泡在电子束辐照前呈多边形, 气泡壁为晶体学密排面, 如图 6(a) 所示, 据此可以判断 Ar⁺ 注入过程中样品温度达到 $0.3T_m$ — $0.55T_m$ (T_m 为样品熔点)^[21], 即温度大约在 200—300 °C. 这是由于注入 Ar⁺ 时, 离子束流高达 10 μ A, 离子束加热效应显著, 离子注入时产生的热量不能及时地通过铜质样品架传导出, 导致纯铝样品温度过高, 样品中的空位可以自由移动, 产生了多边形空洞; 并且样品温度过高还使得样品中的大量氦气和氩气逸出样品表面, 从而使混合气体并没有充满空洞, 样品中气泡内气体压力比较低, 因此即使氦氩混合气体气泡在电子束下辐照了长达 70 min 仍然没有发生放热反应.

本实验证实铝中气泡在电子束辐照下辐照区的铝产生多晶化的现象不是因为多孔材料的导热性能差, 由电子束加热效应引起的. 其原因可能是电子束辐照下气泡发生了某种放热反应. 与气泡相关的放热反应使人不禁想到声致发光这一奇异的实验现象, 目前其机理仍不明确, 许多学者对此进行了探索研究. Moss 等^[22] 通过模型计算, 预测声致发光过程中气泡内部会产生等离子体; Flannigan 和 Suslick^[23] 由声致发光实验过程中释放的粒

子推断出了高温高密度等离子体核心的存在; Zhang 和 An^[24] 也计算得到异常的电离过程存在于声致发光的气泡中. 虽然声致发光中的声波作为经典的疏密波, 存在压缩和膨胀相; 而本实验中的电子波是量子化的, 二者的波长相差大约 9 个数量级, 差别很大, 但是由此我们仍然可以得到一些启示. 此外, Ghariba 等^[25] 发现高速水流喷射到抛光的石英表面时, 水流产生的剪切力会使周围的空气发生电离, 从而产生环形的等离子体. 根据本实验的结果, 我们猜想纯铝中的气泡在电子束辐照过程中气泡内高压气体可能发生了等离子体化, 能量积累到一定程度后, 突然发生等离子体熄灭, 短时间内释放出大量的能量, 导致气泡周围铝熔化后重新凝固形成多晶结构, 然而这一等离子化的过程尚不清楚, 该实验现象的机理仍有待进一步求证.

4 结 论

室温条件下利用加速器对纯铝中注入 He⁺, Ne⁺ 和 Ar⁺, 利用 TEM 对铝中的气泡进行电子束辐照, 获得如下实验结果.

1) 200 keV 电子束辐照过程中, 铝中的惰性气体气泡合并长大, 逐渐变亮, 最终爆裂开来, 气泡内部形成许多黑色斑点衬度像, 选区电子衍射花样由单晶斑点衍射花样变为多晶衍射环. 可能在这一过程发生异常放热反应导致气泡附近铝熔化后重新凝固产生多晶.

2) 注 He⁺ 铝中氦气泡在 80 keV 电子束辐照下不会产生多晶衍射环.

3) 纯铝中多边形的氦氩混合气体气泡经过 200 keV 电子束辐照后仍无多晶衍射环产生.

4) 辐照后多晶衍射环来自于辐照过程中气泡破裂后产生的黑色斑点衬度像, 多晶衍射环标定结果表明多晶衍射环是纯铝的晶体结构而不是氧化铝的晶体结构.

参考文献

- [1] Trinkaus H 1983 *Radiat. Eff.* **78** 189
- [2] Swijgenhoven H V, Knuyt G, Vanoppen J, Stals L M 1983 *J. Nucl. Mater.* **114** 157
- [3] Krishan K 1982 *Radiat. Eff.* **66** 121
- [4] Donnelly S E 1985 *Radiat. Eff.* **90** 1
- [5] Birtcher R C, Donnelly S E, Templier C 1994 *Phys. Rev. B* **50** 764

- [6] Johnson P B, Lawson F 2006 *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* **243** 325
- [7] Kinoshita H, Takahashi H 1992 *Bull. Fac. Eng. Hokkaido Univ.* **162** 109
- [8] Kamada K, Kinoshita H, Takahashi H, Kakihana H 1996 *J. At. Energy Soc.* **38** 143
- [9] Kamada K, Kinoshita H, Takahashi H 1996 *Jpn. J. Appl. Phys.* **35** 738
- [10] Kamada K 1992 *Jpn. J. Appl. Phys.* **31** L1287
- [11] Li J, Gao J, Wan F R 2016 *Acta Phys. Sin.* **65** 026102 (in Chinese) [李杰, 高进, 万发荣 2016 物理学报 **65** 026102]
- [12] Li J 2015 *M. S. Thesis* (Beijing: University of Science and Technology Beijing) (in Chinese) [李杰 2015 硕士学位论文 (北京: 北京科技大学)]
- [13] Rong Y H 2006 *Introduction to Analytical Electron Microscopy* (Beijing: Higher Education Press) p28 (in Chinese) [戎咏华 2006 分析电子显微学导论 (北京: 高等教育出版社) 第 28 页]
- [14] Vladimir A L, Ramesh S, Ahmed H Z 2005 *PNAS* **102** 7069
- [15] Felde A V, Fink J, Müller-Heinzerling T, Pflüger J, Scheerer B, Linker G, Kaletta D 1984 *Phys. Rev. Lett.* **53** 922
- [16] Gandhi K, Dixit D K, Dixit B K 2010 *Physica B* **405** 3075
- [17] Donnelly S E, Rossouw C J 1986 *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res.* **13** 485
- [18] Mitsuishi K, Song M, Furuya K, Birtcher R C, Allen C W, Donnelly S E 1999 *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res.* **148** 184
- [19] Evans J H, Mazey D J 1986 *J. Nucl. Mater.* **138** 176
- [20] Cox R J, Goodhew P J, Evans J H 1987 *Acta Metall.* **35** 2497
- [21] Wan F R 1993 *Irradiation Damage in Metal Materials* (Beijing: Science Press) p101 (in Chinese) [万发荣 1993 金属材料的辐照损伤 (北京: 科学出版社) 第 101 页]
- [22] Moss W C, Clarke D B, Young D A 1997 *Science* **276** 1398
- [23] Flannigan D J, Suslick K S 2005 *Nature* **434** 52
- [24] Zhang W J, An Y 2015 *Chin. Phys. B* **24** 047802
- [25] Gharib M, Mendoza S, Rosenfeld M, Beizai M, Pereira F J A 2017 *PNAS* **114** 12657

Anomalous heat-releasing phenomenon from bubbles in aluminum induced by electron beam irradiation*

Du Yu-Feng Cui Li-Juan Li Jin-Sheng Li Ran-Ran Wan Fa-Rong[†]

(Department of Materials Physics and Chemistry, School of Materials Science and Engineering,
University of Science and Technology Beijing, Beijing 100083, China)

(Received 11 June 2018; revised manuscript received 21 July 2018)

Abstract

In the early 1990s, Japanese scholars unexpectedly observed that single crystal changes into polycrystal in deuterium-implanted aluminum under electron irradiation, but never found the same phenomenon in the hydrogen-implanted aluminum. However, previous study of our group has proved that the polycrystalline phenomenon can also be observed in hydrogen-implanted aluminum during electron irradiation. In this paper, the behavior of inert gas bubbles in aluminum under electron irradiation is investigated, aiming to further explore the effects of ion species, electron voltage and the pressure of bubbles on the anomalous heat-releasing reaction of bubbles induced by electron irradiation. In the experiment, the transmission electron microscope (TEM) samples of pure aluminum were implanted with He⁺, Ne⁺, Ar⁺ respectively by ion accelerator at room temperature. The TEM is used to *in-situ* observe and investigate the evolution of microstructure and the change of selected electron diffraction patterns of gas bubbles during electron irradiation. The results show that gas bubbles form in aluminum sample after ion implantation. During 200 keV electron irradiation TEM results show that the three kinds of inert gas bubbles all coalesce, grow up and bust separately. Finally, lots of nanoscale black dots appear inside them. At the same time, the electron diffraction patterns change from single crystal diffraction spots to polycrystalline diffraction rings. The dark field images indicate that the diffraction rings are induced by these black dots. Moreover, from the characterization of the diffraction rings, it is known that these black dots are pure aluminum rather than aluminum oxide. Therefore, the possibility that the diffraction rings result from aluminum oxide is eliminated. It is assumed that a certain kind of heat-releasing reaction should happen when the gas bubbles are irradiated by electrons, which leads to the poly-crystallization of aluminum after electron irradiation. However, while helium bubbles are irradiated by electrons with an energy of 80 keV, no diffraction ring is observed after electron irradiation. The same phenomenon as that in the case of helium bubbles irradiated by 80 keV electrons is observed. When helium and argon mixed bubbles with polygonal shape are irradiated by 200 keV electrons, no diffraction ring is observed after electron irradiation either. The reason might be related to the energy of the electron beam and the pressure of gas bubbles separately. There should be a threshold value of electron voltage for the heat-releasing reaction. In addition, the pressure of the gas bubbles is also a key factor for the heat-releasing reaction. The heat-releasing phenomenon of gas bubbles reminds us of the sonoluminescence phenomenon. By model calculation, it is predicted that there is a plasma core in the bubble during sonoluminescence. According to the hint from researches of sonoluminescence, an assumption is made to explain the mechanism of heat-releasing reaction of gas bubbles during electron irradiation. It is that the implanted gas in high pressure bubbles in aluminum is excited into plasma during electron irradiation. When the energy of plasma in the bubbles is accumulated to a certain degree, the plasma is extinguished suddenly. In this process, a lot of heat is released to melt the aluminum, thus leading the aluminum to recrystallize.

Keywords: inert gas bubbles, aluminum, electron beam irradiation, polycrystalline diffraction rings

PACS: 61.80.Fe, 68.37.Lp, 61.80.-x

DOI: 10.7498/aps.67.20181140

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11875085, 59971010).

[†] Corresponding author. E-mail: wanfr@mater.ustb.edu.cn