

УДК 533.924

Особенности поверхностных явлений, индуцируемых ионным облучением умеренной и высокой интенсивности

Л. Б. Беграмбеков, А. М. Захаров

Национальный исследовательский ядерный университет «МИФИ»,
г. Москва, Россия
lbb@plasma.mephi.ru

Статья представляет выполненные ранее и новые исследования, посвященные образованию и развитию микроскопических образований на поверхностях металлов и сплавов под действием ионного облучения. Проводится сравнение условий их появления и развития при различных интенсивностях ионного облучения. Обсуждаются механизмы их появления и развития при ионных облучениях умеренной интенсивности и рассматриваются возможные условия и причины их формирования при большой интенсивности ионного облучения и при ионном облучении большой мощности.

1. Введение

Изменение морфологии поверхности за счет образования при ионном и плазменном облучении различных микроскопических образований (вискеров, конусов, пирамид, пор, блистеров) было зафиксировано многими авторами [1–7]. В экспериментах, выполненных в основном во второй половине прошлого века с ионными пучками умеренной интенсивности ($10^{18} - 10^{20}$ ион/м²), подобные образования обнаруживались на поверхностях различных металлов и сплавов в процессе ионного облучения в широком диапазоне энергий: от сотен электрон-вольт до десятков килоэлектрон-вольт. В экспериментах использовались ионы различных элементов, чаще всего ионы инертных газов – аргона или гелия.

Развитие термоядерных исследований в последние десятилетия поставило на повестку дня вопрос о модификации поверхности при потоках ионов

на порядки большей интенсивности ($10^{22} - 10^{25}$ ион/ м^2) и потоках большой мощности (десятки и сотни МВт/ м^2). Проведенные к настоящему времени исследования показали, что облучение ионами столь высокой интенсивности и мощности также приводит к развитию перечисленных выше явлений, но условия и закономерности и, как представляется, механизмы их появления и развития значительно отличаются от тех, что были характерны для экспериментов с облучающими поверхность ионными потоками умеренной интенсивности.

В работе проведено сравнительное исследование закономерностей и условий развития микроскопических явлений на поверхности при облучении ионными потоками различной интенсивности. Делается вывод о возможных механизмах развития указанных явлений при интенсивных потоках облучающих ионов и приводятся предположения о характере влияния интенсивного облучения на поверхность металлов.

2. Появление микроскопических образований на поверхности при облучении ионными потоками умеренной интенсивности

2.1. Появление конусов

Было показано, что образование конусов начиналось с роста над облучаемой поверхностью цилиндрических выступов, трансформирующихся под действием облучения в грибовидные образования или «шарики-на-ножке» (рис. 1) [5]. В «тени» шарика формировалась коническая форма выступа. Развитие конуса продолжалось в результате меньшей скорости его распыления по сравнению с окружающей поверхностью, причем, во все время роста конуса его форма оставалась стабильной. Развитие структур конусов (и в ряде случаев пирамид) отмечалось на металлах (рис. 2), сплавах [7], полупроводниках [1].

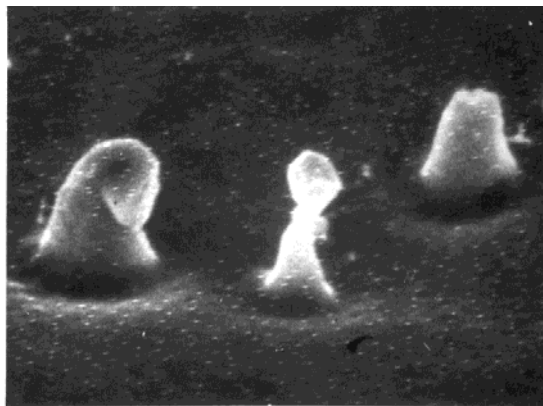


Рис. 1. «Шарик-на-ножке»: медь, Ar^+ , 600 эВ. Увеличение – 5000

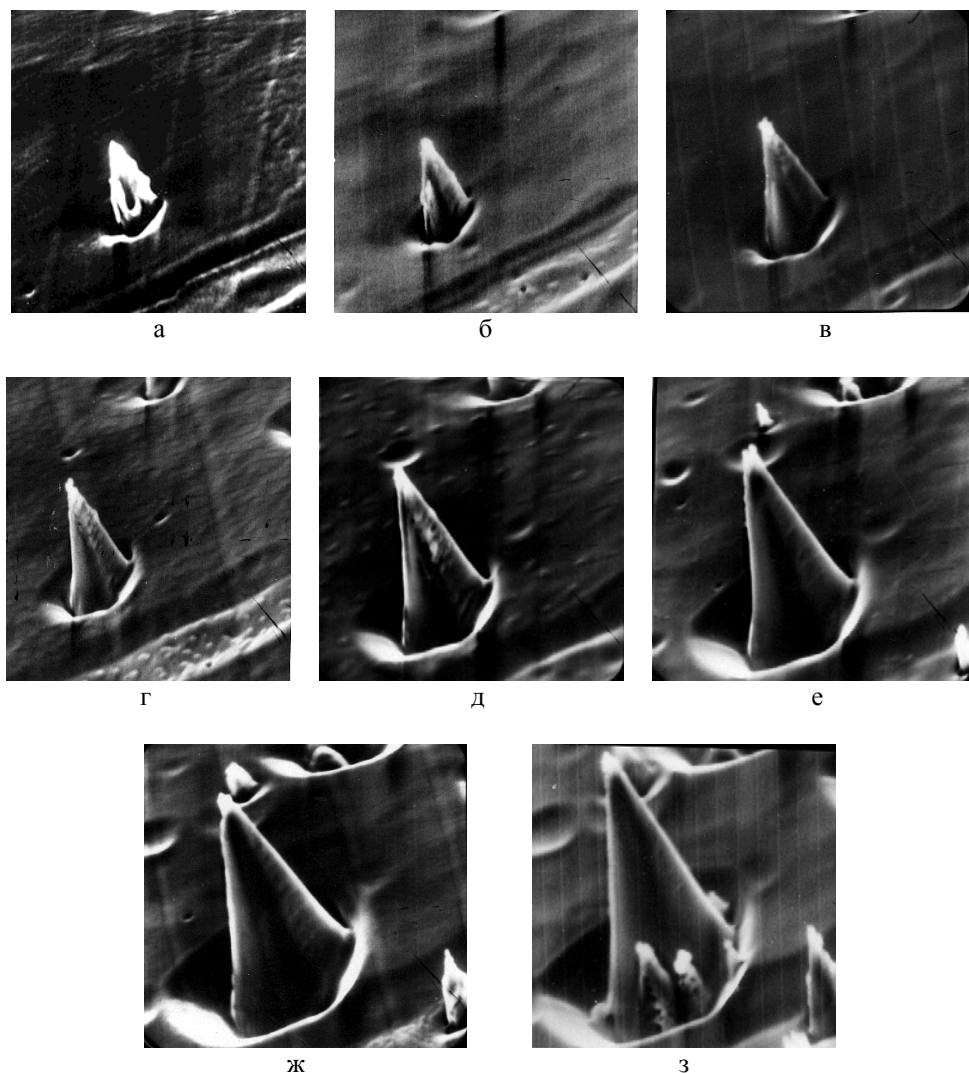


Рис. 2. Развитие конуса в период стабилизации [5]. Медь, ионы Ar^+ , $E = 600$ эВ, $j = 3 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-2}$. Увеличение – 1000. Время облучения (мин): а – 90, б – 110, в – 130, г – 150, д – 170, е – 200, ж – 230, з – 250

Появление конусов было обнаружено на облучаемой ионами аргона поверхности графита, при напылении на графит атомов Мо или W. На верхушках образовавшихся конусов отчетливо видны кристаллы, чаще всего имеющие выделенное направление роста и называемые в англоязычной литературе «whisker» (рис. 3).

Г. К. Венер в работах [3, 4] проанализировал свои экспериментальные результаты и выявил основные закономерности конусообразования. Он показал, что:

– конусообразование инициировалось присутствием на поверхности инородных атомов, принадлежащих более тугоплавкому элементу чем материал образца;

– конусообразование происходило только при температурах выше значения $T = (0,3 - 0,4)T_{\text{плав}}$ ($T_{\text{плав}}$ – температура плавления материала образца);

– существовал период стабильного сохранения формы конусов, на протяжении которого они увеличивались в размерах, при этом вокруг них образовывались кольцевые углубления (рис. 2).

Модель, объясняющая существование периода стабильной формы и другие закономерности развития конусов, основывается на том, что ионная бомбардировка создает, благодаря распылению, конические формы, и одновременно, по-видимому, в результате внедрения атомов поверхности в приповерхностный слой, способствует развитию сжимающих напряжений на окружающей поверхности и на склонах конусов (рис. 4). В то же время вершина конуса размером $R \approx L$, где L – глубина напряженной приповерхностной зоны, остается свободной от напряжений. Поэтому по склонам конуса в вершину устанавливается диффузионный поток, компенсирующий ее распыление при определенном угле наклона склонов конуса относительно угла падения ионов. Таким образом, развитие конуса есть результат того, что, благодаря ионно-стимулированным процессам на поверхности склонов и в приповерхностных слоях, распыление его вершины происходит медленнее, чем распыление окружающей плоской поверхности. В результате, высота конуса увеличивается в процессе развития, хотя его вершина всегда находится ниже уровня первоначальной поверхности [5].

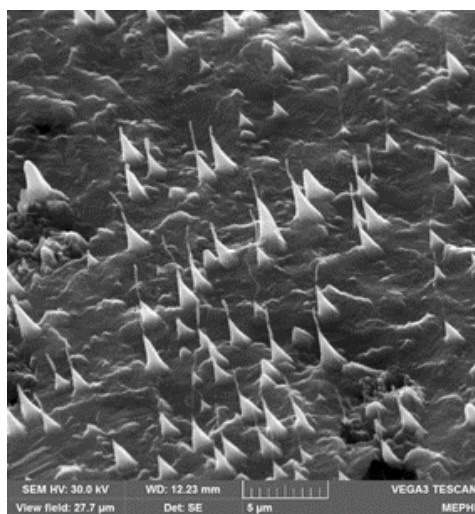


Рис. 3. Рельеф поверхности графита МПГ-8 после облучения ионами Ag^+ в присутствии потока атомов молибдена. $E_i = 700$ эВ,

$$T = 450^\circ\text{C}, \Phi_{\text{обл}} = 8 \cdot 10^{19} \text{ ион/см}^2$$

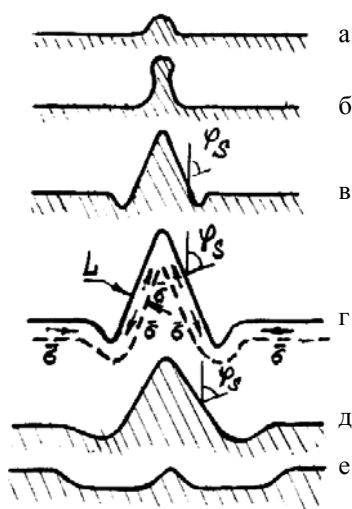


Рис. 4. Схема развития конуса [5]: а – первоначальный выступ, б – шарик на ножке, в, г – период стабилизации формы конуса и скорости его роста, д – разрушение вершины и увеличение угла наклона склонов, е – распыление и исчезновение конуса

Подобным же образом напряжения на облучаемых склонах влияют на развитие кольцевой канавки конического сечения вокруг конуса. Под их влиянием формируется поток вакансий в область дна углубления, где уровень напряжений оказывается повышенным. В результате предотвращается образование плоского дна, стабилизируется его форма и скорость роста глубины канавки. Часть материала из углубления благодаря диффузии поступает на склоны конуса. Материал поступает на склоны конуса также благодаря перенапылению со склонов канавки и с окружающих его участков плоской поверхности.

2.2. Развитие кристаллических структур (вискеров)

Кристаллы в форме длинных тонких цилиндров были названы вискерами (whisker – по-английски: кошачий ус). Чаще всего вискеры наблюдались на металлах, когда на бомбардируемой ионами поверхности присутствовали атомы по крайней мере двух различных элементов. Причем Г. К. Венер [4] показал, что вискеры образуются из материала того поверхностного компонента, который имеет меньшую температуру плавления. Обнаруживались вискеры и на поверхностях графита, диэлектриков и полупроводников (SiO_2 , InSb). Вискеры могли появляться и на моно атомной поверхности в период отжига структурных дефектов, внесенных, например, механической обработкой (рис. 5).

Кристаллы интенсивно росли в течение ограниченного времени. В период роста большинство из них сохраняло близкую к цилиндрической форму. Затем рост замедлялся и прекращался вовсе. Начинался этап трансформации формы, проходивший по-разному у различных вискероов (рис. 5). Наконец, следовало превращение вискероов в конические фигуры и их постепенное разрушение.

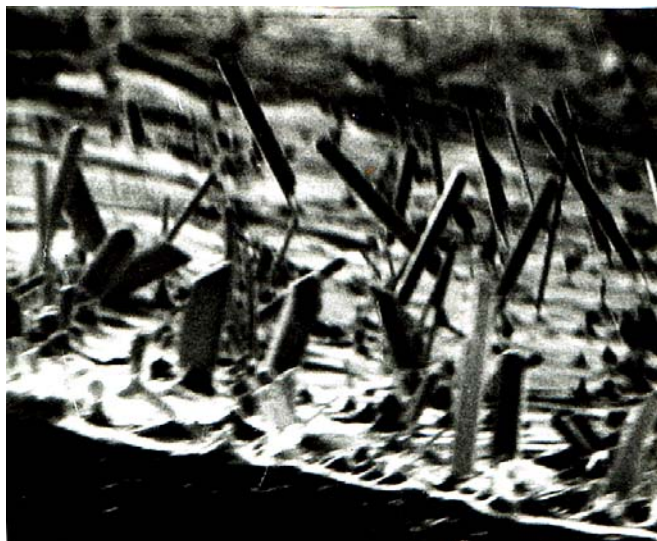


Рис. 5. Панорама покрытой вискерами грани медного образца после облучения ионами Hg^+ ($E_i = 50$ эВ, $\Phi_{\text{обл}} = 2,5 \cdot 10^{20}$ ион/см² [6]. Увеличение 1500)

Согласно одной из моделей вискер растет в результате выноса скольжением на поверхность дислокационных междоузельных петель, генерируемых источником ненасыщаемых дислокаций типа Бардина–Херинга [5] (рис. 6,а). Если такой источник расположен в зоне напряжений и соответствующим образом сориентирован относительно поверхности, то его работа, т. е. образование дислокационных петель и их скольжение из зоны напряжений на поверхность, приведет к формированию вискера. «Материал» к основанию растущего вискера поставляется диффузионным путем. Другая модель предполагает, что зарождение вискера обусловлено наличием на поверхности бугорка (выступа). В поле напряжений винтовая дислокация будет скользить вокруг бугорка, последовательно вынося на поверхность атомные ряды и формируя, таким образом, вискер (рис. 6,б).

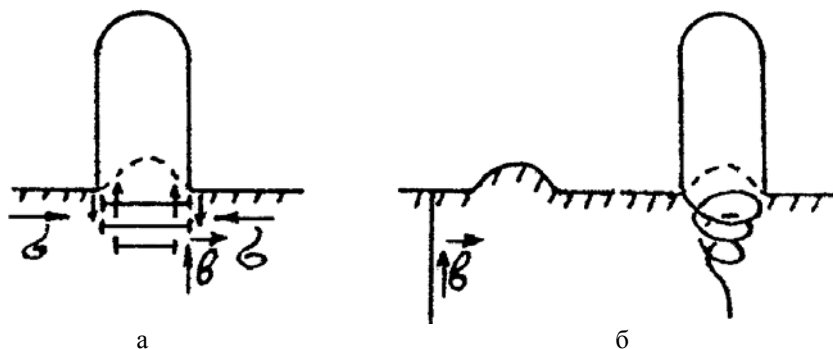


Рис. 6. Схема дислокационного роста вискеров, благодаря работе дислокационного источника Бардина–Херинга (а) и скольжению винтовой дислокации вокруг бугорка (б)

2.3. Развитие блистеров

Развитие блистеров (блистеринг) происходило при облучении металлов и диэлектриков, кристаллических и аморфных материалов чаще всего ионами гелия и изотопов водорода (рис. 7). На металлах блистеры наблюдаются при $T \approx (0,1 - 0,2)T_{\text{плав}}$. В интервале температур $0,2T_{\text{плав}} < T < 0,5T_{\text{плав}}$ блистеры определенной формы и размеров не формируются. Происходит развитие параллельных поверхности трещин и затем отделение фрагментов облученной поверхности, размеры которых часто достигают размеров в сотни квадратных микрон. Этот процесс называют шелушением (флекингом).

Образование блистеров начинается с определенной дозы облучения, называемой критической дозой Φ_{kr} [8]. Она растет с энергией ионов, а также с увеличением растворимости газа. В частности, для водорода Φ_{kr} больше, чем для гелия, соответственно $\sim 10^{17}$ и 10^{16} ион/см². Очевидно, что если за время облучения дозой Φ_{kr} распылится слой, больший, чем средняя глубина проникновения ионов R_i , то концентрация атомов газа в поверхностном слое мишени будет всегда меньше критической и блистеры не образуются. Отсюда следует условие возникновения блистеринга [8]:

$$S\Phi_{kr} < R_i N,$$

где S – коэффициент распыления; N – плотность атомов мишени.

Существует несколько теоретических описаний блистеринга [8–11]. Предполагается, что при бомбардировке газовыми ионами в приповерхностных слоях образуются макроскопические пузырьки внедренного газа за счет диффузии газа из окружающего пространства (пузырьки размерами $>10 \text{ \AA}$ действительно наблюдались экспериментально) [9, 11]. По мере их роста в приповерхностном слое развиваются нормальные поверхности сжимающие напряжения, которые в конце концов приводят к разрыву материала между пузырьками и образованию трещины (рис. 7). Слой материала над трещиной изгибается под действием напряжений, образуя блистеры.



Рис. 7. Блистеры на лейкосапфире (H^+ , $E_i = 10 \text{ кэВ}$,
 $\Phi_{\text{обл}} = 1 \cdot 10^{18} \text{ ион/см}^2$, $T = 400 \text{ К}$)

3. Появление микроскопических образований на поверхности при облучении ионными потоками высокой интенсивности

3.1. Развитие конусов и пирамид

При интенсивном ионном облучении условия и закономерности развития конусов и пирамид (рис. 9) значительно отличались от того, что отмечалось при умеренных потоках облучающих ионов.

1. Температура появления конусов и пирамид на вольфраме соответствовала температуре ($T = 480\text{--}520 \text{ К}$), при которой конусы и пирамиды развивались на меди, т. е., развивались при температуре $T \approx 0,4T_{\text{плав меди}}$. Заме-

тим, что при умеренных интенсивностях облучающего потока ионов аргона ($E_i = 400$ эВ, $j = 1,2 \cdot 10^{20} \text{ м}^{-2}\text{с}$, $\Phi = 5 \cdot 10^{22} \text{ м}^{-2}$) конусы на вольфраме появлялись при $T = 1150 \text{ К} \approx (0,3 - 0,4)T_{\text{плав}}$.

2. Авторы работы [12] указывали, что в основаниях конуса и пирамиды, представленных на рис. 8, находятся пустые (возможно, наполненные газом) полости. Поэтому, они говорят о блистерах в форме, соответственно, пирамиды и конуса.

3. Появление выступов в форме пирамид и конусов происходило при облучении ионами с энергией (38 эВ), намного меньшей, чем при умеренных облучающих потоках.

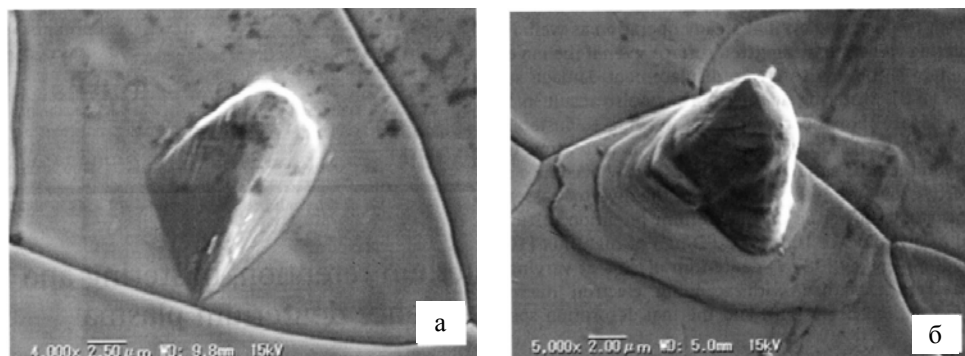


Рис. 8. Блистеры (конус и пирамида) на поверхности вольфрама, после большой дозы облучения интенсивным потоком низкоэнергетичных ионов дейтериевой плазмы ($E_i = 38$ эВ, $j = 10^{22} \text{ с}^{-1}$, $\Phi \leq 10^{27} \text{ м}^{-2}$, $T = 480 - 520 \text{ К}$) [12]: а – крышка блистера в форме пирамиды, б – крышка блистера в форме конуса

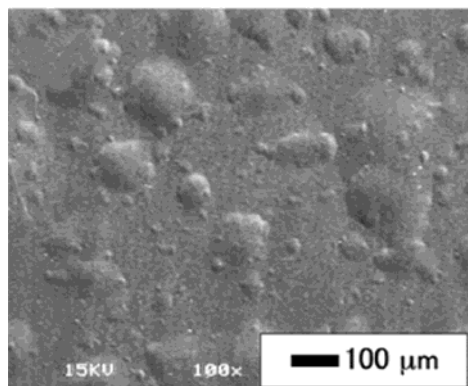
3.2. Развитие блистеров

Особенности развития блистеров и отслоение участков приповерхностного слоя – появление чешуек (блистеринг и флекинг) [12, 13] в случае высокой интенсивности облучения ионами дейтерия ($\approx 10^{22} \text{ м}^{-2}\text{с}$), также существенно отличались от закономерностей их формирования при облучении поверхности ионными потоками умеренной интенсивности.

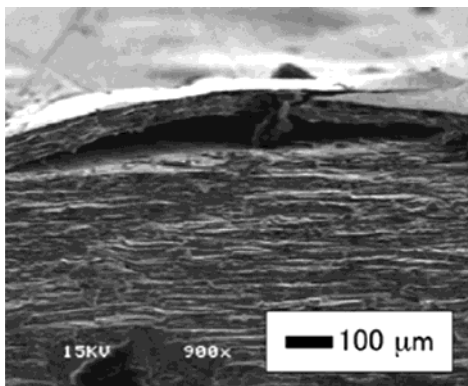
1. Толщины крышек блистеров, появившихся на вольфраме, облучаемом ионами дейтерия с энергией (90 эВ) и толщины отслоившихся чешуек (рис. 10) на несколько порядков величины превышали пробеги ионов в вольфраме (рис. 9,а,б) [13].

2. Рост блистеров и отслоение чешуек происходило, соответственно, при температурах 550 и 618 К, характерных для меди.

3. Как показали расчеты, температура, до которой могла нагреться расплавившаяся под облучение чешуйка (рис. 11), даже в случае полного отсутствия ее контакта с поверхностью, не превышала 1300–1400 К, т. е., примерно соответствовала температуре плавления меди.



а



б

Рис. 9. Блистеры на поверхности вольфрама, облученного дейтериевой плазмой ($E = 90 \text{ eV}$, $\Phi = 3,4 \cdot 10^{25} \text{ m}^{-2}$, $T = 550 \text{ K}$) [13]

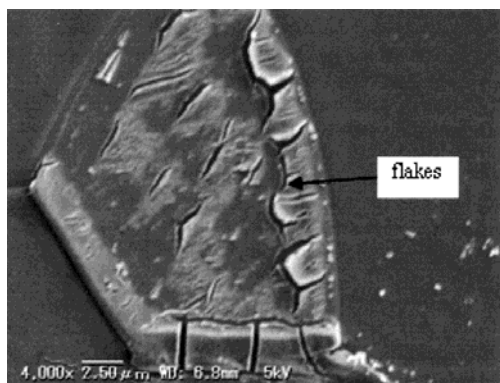


Рис. 10. Отслоившаяся чешуйка на поверхности вольфрама, облучаемого дейтериевой плазмой ($E = 38 \text{ eV}$, $j = 10^{22} \text{ s}^{-1}$, $\Phi = \Phi \leq 10^{27} \text{ m}^{-2}$, $T = 618 \text{ K}$) [12]

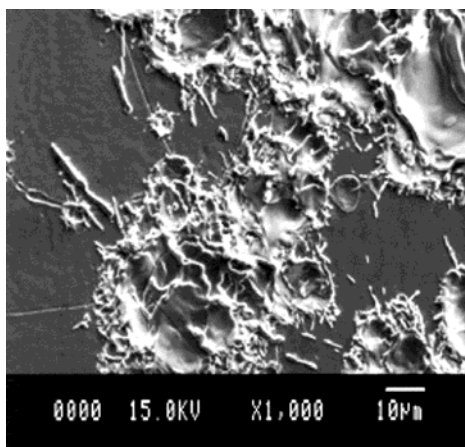


Рис. 11. Чешуйка, расплавленная плазменным облучением ($E = 38 \text{ eV}$, $j = 10^{22} \text{ s}^{-1}$, $\Phi = \Phi \leq 10^{27} \text{ m}^{-2}$, $T = 618 \text{ K}$) [12]

4. Заключительные замечания

Сравнение результатов приведенных выше экспериментов показывает, что условия и закономерности развития конусов, пирамид, блистеров при умеренной и высокой интенсивностях облучения значительно различаются. Эти различия, заставляют признать, что высокая интенсивность ионного облучения существенно изменяет параметры процессов в приповерхностных слоях, приводящих к развитию конусов и блистеров.

В этой связи отметим следующее:

- развитие напряжений в приповерхностных слоях и распыление поверхности, то есть процессы, обеспечивающие развитие конусов и пирамид, при интенсивном облучении стимулируются низкоэнергетическими ионными потоками, не способными привести к смещению атомов вольфрама из узлов кристаллической решетки и к удалению их с поверхности при умеренных потоках облучения;

- диффузия атомов вольфрама, еще один процесс, участвующий в развитии конусов и пирамид, стимулируется при интенсивном облучении также при намного меньших температурах;

- образование блистеров, по-видимому, на границе кристаллических зерен, на глубине, на несколько порядков величины, превышающей пробеги ионов дейтерия в вольфраме, также может является следствием ускоренной диффузии атомов дейтерия в вольфраме в процессе интенсивного облучения.

Развитие в вольфраме перечисленных выше процессов и появление конусов, пирамид, блистеров при температурах, характерных для меди, указывает на то, что интенсивное ионное облучение приводит к ослаблению межатомных связей и, соответственно, к понижению температуры плавления приповерхностных слоев, толщина которых намного превышают пределы внедрения ионов. Причиной этого, по-видимому, является «пересыщение» изотопами водорода приповерхностных слоев при интенсивных потоках облучающих ионов.

Суммирую все вышесказанное, приходится признать, что насыщенный внедренными атомами водорода приповерхностный слой с ослабленными межатомными связями трансформируется в материал со специфическими свойствами. К «новым свойствам», которые уже наблюдали и которые ожидаются, относятся, по крайней мере, следующие:

- высокий уровень пластичности (супер пластичность приповерхностного слоя вольфрама, облучаемого интенсивным потоком ионов дейтерия отмечали авторы работы [12]);

- понижение температуры плавления (понижение температуры плавления вольфрама, облучаемого интенсивным ионным потоком подтверждается результатом расчета температуры плавления (618 K) чешуйки вольфрама, лежащей на поверхности, облучаемой интенсивным потоком ионов дейтерия [12]);

- уменьшение порога распыления (значительная скорость распыления вольфрама интенсивными потоками ионов дейтерия с энергией ниже порога распыления (5 эВ) отмечалось в работе [14]);

- уменьшение теплопроводности (предполагается);

- уменьшение поверхностной энергии (предполагается);

- уменьшение электрической проводимости (предполагается).

Список литературы

1. Gvosdover R. S., Efremkova V. M., Sheljakin L. B., Yurasova V. E. Formation of cones during sputtering // *Rad. Eff.*, 27, 1976, p. 237–243.
2. Auciello O., Kelly R., Iricibar R. New insight into the development of pyramidal structures on bombarded copper surfaces // *Rad. Eff.*, 46, 1980, p. 105–109.
3. Wehner G. K. // Report NASA CR-159549, 1979.
4. Wehner G. K. Cone formation as a result of whisker growth on ion bombardment metal surface // *J. Vac. Sci. Technol.*, A3(4), 1985, p. 1821–1835.
5. Беграмбеков Л. Б., Захаров А. М., Пустобаев А. А., Тельковский В. Г. Развитие вискерсов и конусов на бомбардируемой ионами поверхности // *ФизХОМ.*, № 5, (1989), с. 26–33.
6. Беграмбеков Л. Б. Монокристаллические новообразования на поверхности твердых тел при корпускулярном облучении // *Поверхность*, № 6, 1986, с. 125–128.
7. Begrambekov L. B., Zakharov A. M. Sputtering of metal alloys at elevated temperatures // *Nucl. Instr. & Meth.*, B 90, 1994, p. 477–481.
8. Мартыненко Ю. В. Теория блистеринга // Препринт ИАЭ-3145, ИАЭ им. И. В. Курчатова, М., 1979.
9. Roth Y., Behrisch R., Scherzer B. M. V. // *J. Nucl. Mater.*, 1974, vol. 56, p. 365–376.
10. Девятко Ю. Н., Маклецов А. А., Рогожкин С. В., Тронин В. Н. Неравновесные точечные дефекты и фазовые переходы в облучаемых металлах // Препринт МИФИ-035. М.: МИФИ, 1986. 32 с.
11. Wilson W. D., Bisson C. L. // *Rad. Eff.* 1973, vol. 19, p. 53.
12. Shu W. M., Nakamichi M., Alimov V. Kh. et al. Deuterium retention, blistering and local melting at tungsten exposed to high-fluence deuterium plasma // *J. of Nucl. Mater.*, 390–391, 2009, p. 1017–1021.
13. Ohno N., Kajita S., Nishijima Dai, Takamura S. Surface modification at tungsten and tungsten coated graphite due to low energy and high fluence plasma and laser pulse irradiation // *J. of Nucl. Mater.*, 363–365, 2007, p. 1153–1159.
14. Guseva M. I., Gureev V. M., Kolbasov B. N., Korshunov C. N., Martynenko Yu. V., Petrov V. B., Khripunov B. I. // *Letters in J. of Experimental and Theoretical Physics*, 77/7, 2003, p. 430.

Features of surface phenomena induced by ion irradiation of moderate and high intensity

L. B. Begrambekov, A. M. Zakharov

National Research Nuclear University MEPhI,
Moscow, Russian Federation

The article presents earlier and new studies on the formation and development of microscopic formations on the surfaces of metals and alloys under the influence of ion irradiation. A comparison of the conditions for their appearance and development at various intensities of ion irradiation is made. The mechanisms of their appearance and development during moderate-intensity ion irradiation are discussed, and the possible conditions and reasons for their formation with high-intensity ion irradiation and high-power ion irradiation are considered.