

ОБЪЕДИНЕННЫЙ ИНСТИТУТ ЯДЕРНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ

Д14-2005-183

На правах рукописи
УДК 621.315; 536.372; 539.124

АЛИ САИД ХАЛИЛ

**ИССЛЕДОВАНИЕ РАСПЫЛЕНИЯ ТВЕРДЫХ ТЕЛ
ПРИ ОБЛУЧЕНИИ ВЫСОКОЭНЕРГИЧНЫМИ
ТЯЖЕЛЫМИ ИОНАМИ**

Специальность: 01.04.07 — физика
конденсированного состояния

Автореферат диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Дубна 2005

Работа выполнена в Лаборатории ядерных реакций им.Г.Н.Флерова
Объединенного института ядерных исследований, Дубна

Научный руководитель:

доктор физико-математических наук

А.Ю. Дидык

Официальные оппоненты:

доктор физико-математических наук

А.Б.Цепелев

доктор физико-математических наук

В.И.Луциков

Ведущая организация:

Государственный институт стали и сплавов, Технологический университет,
г.Москва

Защита состоится “___” _____ 2006 года в “___” час
на заседании диссертационного совета Д.017.01.05 при Лаборатории
нейтронной физики им.И.М.Франка и Лаборатории ядерных реакций
им.Г.Н.Флерова ОИЯИ (141980 г.Дубна Московской области, ОИЯИ, ЛЯР).

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке ОИЯИ.

Автореферат разослан “___” _____ 2005 года

Ученый секретарь диссертационного совета
кандидат физико-математических наук



А.Г.Попеко

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность темы

Изучение радиационных явлений в материалах приобрело важнейшее значение при развитии ядерной энергетики. Радиационные воздействия и условия использования современных конструкционных материалов играют значительную роль во многих практически важных технологических применениях.

К уже имеющимся и возможным областям использования в дальнейшем относятся: ядерные реакторы деления, создаваемые термоядерные реакторы, ядерные экспериментальные установки, ускорители заряженных частиц и космические лучи, применительно к космическим аппаратам. К разновидностям облучающих излучений относятся: быстрые и тепловые нейтроны, легкие и тяжелые ионы, электроны и гамма-кванты.

Экспериментально измеренные и определенные изменения в материалах обусловлены радиационными дефектами, образующимися при радиационных воздействиях. Выполненные интенсивные исследования позволили накопить базу экспериментальных данных по поведению материалов при различных радиационных воздействиях. В первую очередь это относится к научно-прикладным исследованиям, но также имеет и большое значение для фундаментальных работ по выяснению особенностей взаимодействия материалов при бомбардировке их частицами с высокими энергиями, в особенности быстрыми тяжелыми ионами, которые предоставляют уникальные возможности для облучения материалов при контролируемых условиях по температуре облучения, по скорости наработки радиационных дефектов, флюенсов облучения и т.д. При этом создаются значительные нарушения как на поверхности

материалов, так и в их объеме вдоль проективного пробега бомбардирующей частицы, приводящие к изменениям важных физико-химических свойств, таких как механические и другие свойства. При этом собираемая экспериментальная информация и создаваемые на ее основе феноменологические модели недостаточно адекватно описывают наблюдаемые явления. Это сказывается в том числе и на создании коммерческих энергетических термоядерных реакторов слияния.

Суммируя написанное выше нужно отметить, что исходные спектры первично-выбитых атомов могут изменяться путем вариации масс и энергий ионов, а следовательно и энергий в каскадах смещений от десятков эВ/а.е.м. до сотен кэВ/а.е.м. Возможности современных ускорителей тяжелых ионов позволяют получить ионы с энергиями до нескольких десятков МэВ/а.е.м., что дает возможность использовать хорошо сформированные параллельные пучки ионов, которые позволяют получать линейные ионизационные потери в материалах до 80 кэВ/нм. При таких энергиях ионизационные потери значительно превышают упругие потери энергии иона, создают латентные треки в диэлектрических и ряде полупроводниковых материалов, а также вызывают процессы неупругого распыления поверхности с высокими значениями коэффициентов распыления. В большинстве случаев эволюция микроструктуры и других свойств этих материалов обусловлены рядом различных механизмов, которые могут конкурировать друг с другом.

Для того чтобы выделить особенности того или иного механизма взаимодействия наилучшая возможность использовать в исследованиях монокристаллы, чистые металлы или модельные сплавы. Это позволяет изучить выделенный конкретный механизм взаимодействия.

Выполненные исследования нескольких чистых металлов, полупроводников, высоко-ориентированного пиролитического графита (ВОПГ) и хромо-никелевой стали, важны не только для их технологических применений, например, в реакторах синтеза, но и для создаваемых

феноменологических моделей, для комплексного анализа проблем, которые могут представлять важность технологических применений.

Применение быстрых тяжелых ионов с высокими неупругими ионизационными потерями энергии для изучения радиационных явлений в конденсированных средах дает уникальные возможности для наблюдения целого ряда особенностей в процессах образования радиационных дефектов, которые не могут быть объяснены с точки зрения традиционного подхода, основанного на роли и механизма только упругих столкновений.

За последние десятилетия было опубликовано значительное количество работ о явлении упругого распыления. Распыление – это эрозия поверхности в течении ионной бомбардировки. Большинство исследований было направлено на описание упругого (ядерного) распыления при облучении ионами низких энергий. Теоретические аспекты и каскадная модель упругого распыления хорошо развиты и поняты.

Но за последующие три десятилетия, существенные научные усилия были направлены на изучение явления неупругого распыления. Эти работы были начаты с использованием продуктов распада (осколков деления) радиоактивных химических элементов с использованием которых был изучен целый ряд особенностей процессов неупругого распыления и поверхностных явлений в металлах, сплавах, диэлектриках, полупроводниках и аморфных материалах. Значения коэффициентов распыления в диэлектрических материалах, аморфных веществах и мелкодисперсных мишенях с размерами зерен меньше, чем 10 нм на два – три порядка величины превышают распыления мишеней с зернами микронных и больших размеров.

Вообще говоря существуют несколько теоретических подходов для описания наблюдаемых явлений: модель теплового пика, другими словами – модель “горячего трека”, и модель кулоновского расталкивания в двойном заряженном поверхностном слое, модель изолированного зерна малого размера, модель тепловой вспышки и отдельные комбинации этих подходов. К сожалению, поведение различных материалов с отличающимися

свойствами при облучении быстрыми тяжелыми ионами далеко не понятно и неясно.

Изучение процессов распыления твердых тел осколками деления радиоактивных химических элементов и последующее применение для таких работ современной техники с использованием быстрых тяжелых ионов показало, что значения коэффициентов распыления не согласуются с теорией каскадного упругого распыления. А распыление с использованием тяжелых ионов высоких энергий значительно (на несколько порядков величины) отличается от распыления твердых тел ионами малых энергий.

Такие исследования изменений структуры поверхности под действием быстрых тяжелых ионов имеют важнейшее значение для элементов действующих ускорителей тяжелых заряженных частиц, таких как вакуумная камеры ускорителя и ионных каналов с экспериментальными установками, для накопительных колец ионов высоких и сверхвысоких энергий, а также для определения радиационной стойкости конструкционных материалов для применения в термоядерных реакторах.

Описанная выше технологическая проблема влияния распыления требует детальных фундаментальных исследований, результаты которых представлены в диссертационной работе. Полученные экспериментальные данные представляют значительный интерес для фундаментальной физики радиационных эффектов в твердых телах.

Цель представленной диссертационной работы – описание и обсуждение экспериментальных результатов в области взаимодействия тяжелых ионов высоких энергий с конденсированными средами, изучение процессов накопления радиационных дефектов и их влияния на сопутствующие процессы распыления в таких материалах, как: чистые металлы, хромо-никелевая сталь, ВОПГ и кремния. Для изучения особенностей на облученных поверхностях были использованы сканирующая электронная микроскопия (СЭМ), сканирующая туннельная (СТМ) и атомно-силовая микроскопии (АСМ).

Целью настоящей работы являются экспериментальные исследования влияния высоких электронных потерь энергии быстрых тяжелых ионов на свойства поверхности некоторых технологически важных чистых металлов и сплавов и определение коэффициентов распыления, благодаря облучению ионами. Такие научно-исследовательские работы имеют важнейшее значение для создания радиационно-стойких конструкционных материалов для современных ядерных установок и реакторов термоядерного синтеза.

Научная новизна.

Выполненные исследования показали, что коэффициенты распыления материалов при высоких уровнях ионизационных потерь энергии тяжелых ионов имеют большие значения, иногда достигая значений $10^2 - 10^4$ атом/ион, по сравнению с упругим каскадным распылением. Прямыми измерениями после облучения тяжелыми ионами было показано, что коэффициенты распыления материалов существенно зависят от наличия в них дефектов различного типа, а также от исходного состояния микроструктуры поверхности. Распыление границ зерен, как наиболее дефектной части материала, гораздо выше в сравнении с телом зерна в поликристаллических материалах.

Практическая значимость работы.

Полученные экспериментальные данные имеют очень важное значение для отбора конструкционных материалов для ядерных и термо-ядерных реакторов, исследовательских ядерно-физических установок и источников излучений, а также для ускорителей тяжелых ионов высоких энергий. Кроме того показано, что отдельные материалы непригодны для технологических применений из-за высокого распыления, в особенности это

касается материалов, используемых в накопительных кольцах заряженных частиц.

Основные результаты, полученные в диссертации

1. Коэффициенты распыления поликристаллических и монокристаллических материалов при неупругих потерях энергии ионов меньших, чем пороговые значения для неупругого распыления незначительно отличаются от предсказываемых значений по теории каскадного упругого распыления.
2. Коэффициенты распыления монокристаллических твердых тел со структурами, близкими к совершенным, то есть с низкой концентрацией дефектов, находятся в согласии с предсказываемыми значениями по теории каскадного распыления (коэффициенты распыления имеют значения 1 – 5 атом/ион).
3. Коэффициент распыления границ зерен на несколько порядков величины превышает значения, предсказываемые каскадной теорией распыления, а также значительно больше, чем распыления поверхности самого зерна. Это обусловлено тем, что граница зерна является сильно дефектной областью. Как показано в работе коэффициенты распыления для областей вблизи границ зерен, например для Ni превышает 10^3 атом/ион.
4. Было изучено распыление чистых поликристаллических металлов Ni, Au и монокристаллического W, а также хромо-никелевых сталей X18H10 и X18H10T, при этом для более точного измерения коэффициента распыления в случае образцов поликристаллического Ni был использован метод “ступеньки”.
5. Было изучено распыление холодно-деформированных образцов поликристаллического Au. Было показано, что значение коэффициента распыления таких образцов ионами ^{86}Kr (с энергией 253 МэВ) значительно выше ($S_{\text{Au}}^{\text{Kr}} \approx 9,2 \times 10^2$ атом/ион), чем распыление отожженных крупно-зернистых образцов золота, также облученных ионами ^{86}Kr (с энергией 200

МэВ). В последнем случае коэффициент распыления составил. $S_{Au} \approx 1$ атом/ион.

6. Было исследовано распыление и изменения структуры поверхности модельного материала высокоориентированного пиролитического графита (ВОПГ) после облучения ионами ^{86}Kr (энергия ионов 253 МэВ) и ^{209}Bi (энергия ионов 710 МэВ). Было показано, после облучения ионами ^{209}Bi (флюенс облучения 10^{12} ион/см²) на поверхности ВОПГ образуются кратеры, поверхностная плотность которых составляет несколько процентов от значения ионного флюенса облучения. Это свидетельствует о том, что процесс образования кратеров носит термо-флуктуационный характер.
7. После облучения ионами ^{86}Kr было обнаружено, что происходит распыление границ между отдельными кристаллитами ВОПГ, а поверхности самих кристаллитов не испытывают изменений.
8. Было изучено распыление поверхности монокристаллического кремния, облученного ионами ^{86}Kr (с энергией 240 и 253 МэВ до флюенсов $2,6 \times 10^{15}$ ион/см²). Сравнение с распылением кремния низкоэнергетичными ионами Ag (с энергией 300 эВ, флюенс $4,8 \times 10^{17}$ ион/см²) позволило оценить значение коэффициента распыления.
9. Можно сделать вывод: что неупругие потери энергии тяжелых ионов имеют основное влияние на распыление металлов, сплавов, ВОПГ и монокристаллического кремния, в особенности для материалов с высокими концентрациями дефектов структуры.
10. Высокие значения коэффициентов распыления для металлов и ряда других материалов показывают, что структура поверхности и распыление очень важны и требуют учета при технологических применениях.

Основные положения, выносимые на защиту:

1. Система дифференциальных уравнений в трехмерном случае и численная схема для вычисления температур электронного газа и

решетки в области вокруг траектории тяжелого иона в модели термического пика.

2. Определены коэффициенты распыления чистых поликристаллических металлов Ni и Au при облучении ионами ^{86}Kr с энергией 253 МэВ.

3. Изучено изменение структуры поверхности и измерены значения коэффициентов распыления в высококачественных монокристаллах вольфрама, высокоориентированного пиролитического графита и кремния при облучении ионами ^{209}Bi и ^{86}Kr высоких энергий.

4. Изменения структуры поверхности хромо-никелевой нержавеющей стали при облучении ионами ^{86}Kr с энергией 253 МэВ были исследованы и коэффициент распыления определен.

5. Показано, что неупругие потери энергии тяжелых ионов высоких энергий не оказывают существенного влияния на распыление чистых поликристаллических металлов, ВОПГ и кремния с совершенной структурой, но играют определяющую роль при наличии в них дефектов с высокой концентрацией.

Апробация работы.

Основные результаты диссертации были представлены и обсуждены на следующих научных конференциях и семинарах: на IX-ой (1999), X-ой (2000), XI-ой (2001), XII-ой (2002), XIV-ой (2004) and XV-ой (2005) международных конференциях "Радиационная физика твердого тела" (Севастополь, Украина); III-ем (1999), IV-ом (2001) и V-ой (2003) школах и рабочих совещаниях "Циклотроны и их применения" (Каир, Египет), XV-ой международной конференции "Ion-Surface Interaction ISI-2001" (Звенигород, Россия, 2001); XVII-ой международной конференции "Ion-Surface Interaction ISI-2005" (Звенигород, Россия, 2005) XIV-ой международной конференции по физике радиационных явлений и радиационному материаловедению (Алушта, Украина, 2004); V-ой международной конференции "Взаимодействие излучений с твердым телом" (Минск, Беларусь, 2003); VII-ой конференции с участием иностранных специалистов "Структурные

основы модификации материалов методами нетрадиционных технологий" (Обнинск, МНТ-VII, Россия, 2003); всероссийской конференции "Влияние внешних факторов на элементную базу авиационной и космической техники" (Королев, Россия, 2003); X-ой юбилейной научно-технической конференции с участием иностранных специалистов "Вакуумная наука и техника" (Крым, Судак, Украина, 2003); 35-ой международной конференции по физике взаимодействия заряженных частиц с кристаллами (МГУ, Москва, Россия, 2005).

Также результаты были представлены и обсуждены на научных семинарах Лаборатории ядерных реакций им.Г.Н.Флерова (ОИЯИ, Дубна, Россия), Институте металлургических исследований (Tabbin Institute for Metallurgical Studies, Каир, Египет), Институту теоретической и экспериментальной физике (Москва, Россия), Ядерном исследовательском научном центре (Каир, Египет) и ряде других центров.

Публикации. Основные результаты диссертации опубликованы в 17 работах.

Структура диссертации. Диссертация состоит из введения, пяти глав и заключения. Объем диссертации – 180 страниц машинописного текста, включая 37 рисунков, 6 таблиц и библиографический список из 160 наименований.

Содержание работы

Во введении обоснована актуальность и сформулирована цель диссертационной работы. Указана практическая важность и научная новизна полученных результатов. Приведены выводы и основные положения, выносимые на защиту.

Первая глава посвящена общему введению и описанию основных проблем, связанных с эффектами, вызванными тяжелыми ионами высоких энергий на поверхностях различных материалов. Цель первой главы – сформулировать основные проблемы

твердых тел под действием тяжелых заряженных частиц высоких энергий. А именно, описаны:

- а) Основные эффекты в твердых телах, вызванные прохождением быстрых тяжелых ионов с высокими и предельно высокими ионизационными потерями энергии.
- б) Упругое и неупругое распыление и другие явления на поверхности различных материалов при бомбардировке тяжелыми ионами низких и высоких энергий.

Вторая глава посвящена рассмотрению тепловых эффектов, вызванных прохождением тяжелых ионов высоких энергий через слой материала вблизи поверхности и по его глубине вдоль проективного пробега и вокруг траектории иона в конденсированных средах.

Эффекты, вызванные высоко-ионизирующими ионами, приводят к повышению температуры в объеме вокруг траектории иона и могут быть описаны в модели термического пика. Система уравнений в трехмерном случае для электронной и решеточной температур введены. Эта система уравнений может быть записана в виде:

$$C_e(T_e) \cdot \frac{\partial T_e}{\partial t} = \frac{1}{r} \cdot \frac{\partial \left(r \chi_e(T_e) \cdot \frac{\partial T_e}{\partial r} \right)}{\partial r} + \frac{\partial \left(\chi_e(T_e) \cdot \frac{\partial T_e}{\partial z} \right)}{\partial z} - g(T_e - T) + A(r, z, t), \quad (2.1)$$

$$C(T) \cdot \frac{\partial T}{\partial t} = \frac{1}{r} \cdot \frac{\partial \left[r \cdot \chi^{\parallel}(T) \cdot \frac{\partial T}{\partial r} \right]}{\partial r} + \frac{\partial \left[\chi^{\perp}(T) \cdot \frac{\partial T}{\partial z} \right]}{\partial z} + g(T_e - T). \quad (2.2)$$

Здесь ось z направлена перпендикулярно поверхности мишени, то есть вдоль направления движения иона; производные по углу отсутствуют, благодаря цилиндрической симметрии; $T_e(r, z, t)$ и $T(r, z, t)$ – температуры электронного газа и решетки, $C_e(T_e)$, $C(T)$ и $\chi_e(T_e)$, $\chi^{\parallel}(T)$ и $\chi^{\perp}(T)$ – удельные теплоемкости и теплопроводности электронов и решетки, соответственно. В общем

случае для температурной зависимости символы “||” и “⊥” означают, что теплопроводность в решетке зависит от кристаллографической ориентации вдоль облучаемой поверхности (||) и перпендикулярно к ней (⊥); g – константа электрон-фононного взаимодействия. Функция $A(r, z, t)$ – объемная плотность мощности, переданной электронам ионом. Эта мощность может быть записана в виде выражения:

$$A(r, z, t) = b \cdot S_{inel0} \cdot \exp\left[\frac{-(t-t_0)^2}{2\sigma_t^2}\right] \cdot \exp\left(-\frac{r}{r_0}\right) \cdot \mu(z) \quad (2.3)$$

Здесь функция $\mu(z)$ – профиль ионизационных потерь энергии иона в форме функции Бете-Блоха (при $\frac{E}{A} > 0.25$ MeV/a.e.m.) или функции Линдхарда-Фирсова (при $\frac{E}{A} \leq 0.25$ MeV/a.e.m.). Обычно считается с применением компьютерной программы SRIM-2000. Значение ионизационных потерь $\mu(z)$, нормализованное на значение ионизационных потерь на входе в мишень, то есть при $z=0$:

$$\mu(z) \equiv \frac{S_{inel}(z)}{S_{inel0}}, \quad S_{inel0} \equiv S_{inel}(z=0) \quad (2.4)$$

Где $E(\text{MeV})$ – энергия иона, $A(\text{a.e.m.})$ – масса иона. Время достижения электронного равновесия, то есть среднее время между двумя последовательными рассеяниями δ -электрона, или время прохождения его средней длины свободного пробега electrons составляет $t_0 \approx (1-5) \times 10^{-15}$ сек. Полуширина распределения по t обычно выбирается с использованием выражения $\sigma_t = t_0$. Экспоненциальное уменьшение пространственной ширины высоко возбужденной электронной области составляет по разным оценкам: $r_0 \leq 2.5$ нм or $r_0 \cong 1$ нм. Нормализующий фактор b определяется из условия:

$$\int_0^{\infty} dt \cdot \int_0^{r_m} 2\pi r \cdot A(r, z, t) \cdot dr = S_{inel} \equiv -\left(\frac{\partial E}{\partial z}\right)_{inel}(z) \quad (2.5)$$

где r_m – максимальный пробег δ -электрона, зависящий его максимальной энергии ε_m , переданной индивидуальному электрону. Система связанных

уравнений для электронного газа и решетки, но без зависимости от координаты Z была впервые введена Е.М.Лифшицем в 1959 году. Схема численного решения введенной системы трехмерных уравнений дифференциальных уравнений также представлена в данной главе. Численный анализ с использованием приближенных выражений для оценки температуры решетки за счет передачи энергии от нагретых электронов рассмотрен. Модель термического пика в твердых телах, благодаря облучению и сопутствующему энергоделиению тяжелых ионов с высокими неупругими потерями энергии, исследована с учетом температурного градиента вокруг траектории тяжелого иона рассмотрена.

В представленной температурной модели при ее численном решении принято во внимание то, что температура решетки может возрастать до температур плавления и даже испарения, то есть введены два возможных фазовых перехода. Как принято считать достижение температуры решетки температуры испарения может наблюдаться преимущественно в диэлектриках и, возможно, в аморфных материалах. Рассмотрена возможность значительного увеличения давления в объеме вокруг траектории иона и соответствующее, вызванное давлением, изменение термодинамических параметров. Численный анализ температур решетки для изученных в диссертации материалов выполнен.

Третья глава описывает научно-исследовательскую базу и установки для облучения образцов на ускорителе У-400 Лаборатории ядерных реакций им.Г.Н.Флерова. В этой же главе представлены экспериментальные результаты по изучению распыления ряда чистых поликристаллических металлов с различной исходной структурой Ni и Au, монокристаллического W и нержавеющей хромо-никелевой стали X18H10 под действием быстрых тяжелых ионов в режиме неупругих потерь энергии.

Как показано, наличие дефектов радиационного происхождения и исходных дефектов значительно усиливает влияние неупругих потерь

энергии, что приводит к существенному увеличению коэффициентов распыления. Как было показано в работах других авторов при низких концентрациях дефектов коэффициенты распыления варьируются в пределах 1-10 атом/ион. Однако, коэффициенты распыления даже крупно-зернистых металлов, облученных быстрыми тяжелыми ионами, увеличиваются на фактор до трех порядков величины при достижении высоких флюенсов облучения ионами ($\sim 2 \times 10^{15}$ ион/см²), благодаря радиационным эффектам, связанными с накоплением радиационных дефектов и их комплексов в облучаемой мишени. Экспериментально измеренные коэффициенты распыления поверхности и особенно границ зерен никеля, в том числе использовался и метод “ступеньки”, могут быть объяснены процессами испарения атомов мишени с поверхности из-за достижения температур вблизи и на поверхности в области “трека” прошедшего иона, превышающих температуру испарения никеля T_{boil} . А следовательно, модель термического пика, описанная в главе 2, может работать при высокой концентрации радиационных и исходных дефектов структуры в данном случае.

Тем самым в работе экспериментально доказано и подтверждено расчетами температур в треке, что неупругие потери энергии иона $(dE/dx)_{inel}$ оказывают сильное влияние и имеют определяющее значение на распыление металлов с высокой концентрацией дефектов в кристаллической структуре зерен. Коэффициент распыления границ и вблизи них зерен значительно больше, чем поверхности самого зерна. Обнаруженный эффект может быть объяснен образованием “трека” с высокой температурой в нем, которая вызывает процессы испарения в твердых телах с их облучаемой ионами поверхности и имеющих высокую концентрацию дефектов всех типов (радиационного происхождения: точечных дефектов и их кластеров, протяженных дефектов: дислокаций, междоузельных петель, включений других фаз, примесей и границ зерен). Изображение поверхности никеля, полученное с использованием сканирующей электронной микроскопии (СЭМ), после облучения ионами ⁸⁶Kr с энергией 305 МэВ до флюенса

$F \cdot t = 2 \times 10^{15}$ ион/см². представлено на рис.1Б. Видно, в сравнении с исходной поверхностью никеля (рис.1А), что облученная поверхность была отполирована облучением ионами, то есть неоднородности поверхности были распылены. Более того, из рис.1Б отчетливо видно, что распыление границ зерен носило более интенсивный характер, чем поверхности самого зерна. Коэффициент распыления границы зерна можно оценить значением $S \approx 2000 \pm 500$ атом/ион.

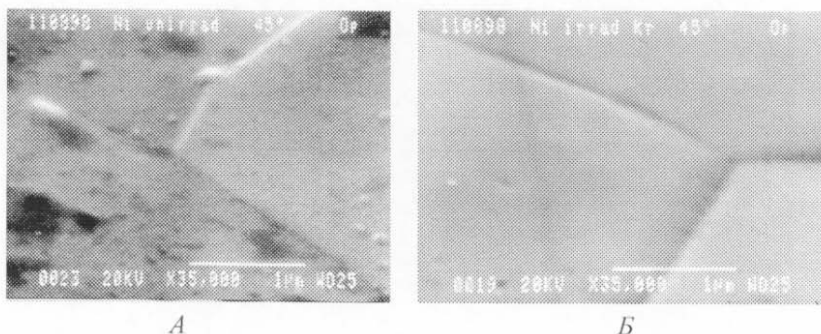


Рис.1. Фотография поверхности поликристаллического Ni, полученная методом СЭМ, до облучения (А) и после облучения (Б) ионами ⁸⁶Kr с энергией 305 МэВ до флюенса $F \cdot t = 2 \times 10^{15}$ ион/см².

В случае поликристаллического Ni предварительно облученного высоким флюенсом ионов при последующем облучении с применением, так называемого метода “ступеньки” был измерен коэффициент распыления поверхности зерна, фотография поверхности с видимой “ступенькой” представлена на рис.2 (метод СЭМ). Метод сканирующей туннельной микроскопии (СТМ) позволяет более детально изучить микроструктуру поверхности проводящих образцов и, тем самым, определить коэффициент распыления на малом участке площади необлученных образцов и образцов, облученных до высоких флюенсов ионов ($F \cdot t > 10^{14}$ ион/см²). Средний перепад высот рельефа между наиболее выступающими частями и впадинами на поверхности для необлученных (3А) и облученных образцов (3Б), как это видно из рис.3 составляет: 53.97 нм и 11.66 нм, соответственно. Здесь и далее

средний перепад высот для необлученных рассчитывался с использованием данных по перепадам рельефа при многократном сканировании методом СТМ по поверхности необлученных (А) и облученных (Б) образцов для улучшения статистики измерений был рассчитан.

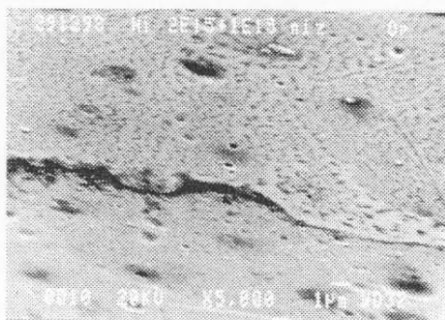
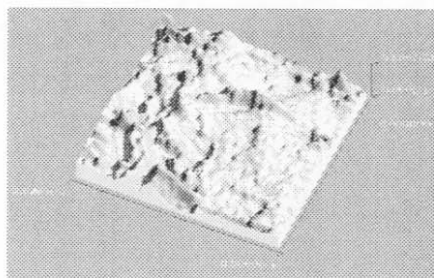
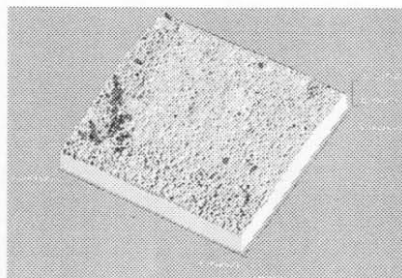


Рис.2. Структура поверхности образцов of Ni предварительно облученных ионами ^{86}Kr с энергией 305 МэВ до флюенса $F \cdot t = 2 \times 10^{15}$ ион/см² (верхняя половина изображения) и затем облучен ионами ^{86}Kr с энергией 245 МэВ до суммарного флюенса $F \cdot t = (2 \times 10^{15} + 1 \times 10^{15})$ ион/см² (нижняя часть изображения). При этом верхняя часть была перекрыта фольгой, когда образец облучался. Средняя высота ступеньки, образовавшейся за счет вторичного облучения, составляет $h \sim 0.3$ мкм.



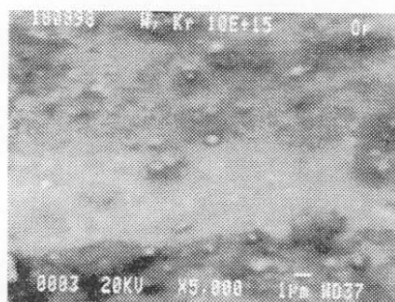
А



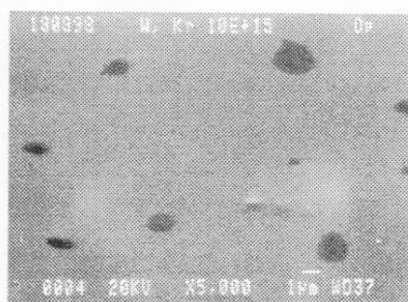
Б

Рис.3. Структура поверхности исходного образца Ni (А), площадь сканирования 2.6 мкм × 2.6 мкм при перепаде высот 54 нм и после облучения ионами Kr с энергией 305 МэВ до флюенса $F \cdot t = 2 \times 10^{15}$ ион/см² (Б), площадь сканирования 3.15 мкм × 3.15 мкм при перепаде высот 47 нм. Изображения получены методом СТМ.

Были выполнены изменения коэффициентов распыления монокристаллического W и хромо-никелевой нержавеющей стали X18H10 (НС) для сравнения. В случае НС был изучен химический элементный состав до и после облучения. Структура поверхности монокристалла W до (А) и после облучения (В) ионами ^{86}Kr с энергией 305 МэВ до флюенса $Ft=2\times 10^{15}$ ион/см² представлена на рис.4. Фотографии были получены методом СЭМ.



А



Б

Рис.4. Поверхностные структуры монокристалла вольфрама перед (А) и после облучения (Б) ионами ^{86}Kr с энергией 305 МэВ до флюенса $Ft=2\times 10^{15}$ ион/см².

В то же время на облученной ионами поверхности хромо-никелевой стали были обнаружены выступы, имеющие полусферическую форму. Образование таких структур, по-видимому, также обусловлено температурными эффектами за счет неупругих потерь энергии тяжелых ионов. Возможно обнаруженный эффект имеет отношение и к явлению блистеринга.

Фотографии структур поверхности хромо-никелевой нержавеющей стали (X18H10), исходной (А) и облученной (Б) ионами ^{86}Kr с энергией 245 МэВ до флюенса $Ft=2,6\times 10^{15}$ ион/см² представлены на рис.5.

Отметим, что все СЭМ исследования были выполнены на сканирующем электронном микроскопе JSM-840 ЛЯР им.Г.Н.Флерова. Выполненные микро-рентгеновские измерения (МРИ) позволили установить,

что после облучения изменился химический состав НС, а именно: до облучения измеренный методом МРИ состав был $\text{Fe}_{69.7}\text{Cr}_{17.6}\text{Ni}_{12.7}$, а после облучения стал - $\text{Fe}_{73.7}\text{Cr}_{19.7}\text{Ni}_{6.6}$. Тем самым концентрация Ni в приповерхностном слое уменьшилась практически в два раза, с одновременным увеличением концентраций Fe и Cr. Слой материала, который изучается методом МРИ составляет менее 1 мкм. Этот факт также свидетельствует о процессах неупругого распыления, обусловленных повышением температур в треках ионов Кг до температур, превышающих температуры испарения атомов, а также о значительных коэффициентах распыления.

Отметим, что полусферические структуры, полностью покрывающие облученную поверхность, образуются на поверхности НС и при облучении ионами Кг с энергией 253 МэВ и при относительно небольших флюенсах, порядка $F \cdot t \sim 1 \times 10^{14}$ ион/см².

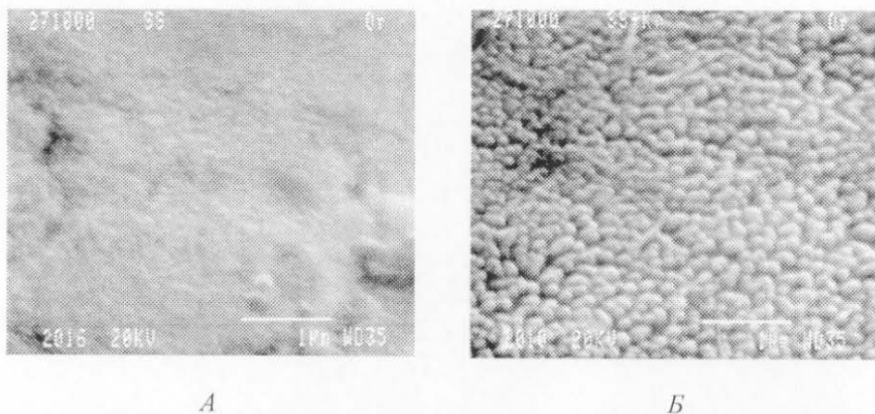


Рис.5. Микрофотографии поверхности нержавеющей стали, полученные методом СЭМ, до облучения (А) и после облучения (Б) ионами $^{86}\text{Kг}$ с энергией 245 МэВ до флюенса $F \cdot t = 2,6 \times 10^{15}$ ион/см².

Кроме того в данной главе приведены результаты по измерению коэффициента распыления холодно-деформированного золота высокой чистоты при облучении ионами $^{86}\text{Kг}$ с энергией 253 МэВ до флюенса 10^{14} ион/см². И показано, что значения коэффициентов распыления таких

образцов золота значительно превышают коэффициенты распыления хорошо отожженных образцов золота с большими размерами зерен.

На основе экспериментальных результатов по измерению коэффициентов распыления Ni, Au, W и хромо-никелевой нержавеющей стали (НС) можно сделать вывод о том, что модель термического пика (см. главу 2) может быть использована для описания и объяснения обнаруженных эффектов в облученных быстрыми тяжелыми ионами материалах, в том числе и возможность достижения температур в треках ионов, превышающих температуры испарения, что естественно приводит к усилению распыления и значительному росту значений коэффициентов распыления для сильно дефектных конденсированных сред и особенно для границ зерен в поликристаллах.

В четвертой главе описаны результаты по изучению структуры поверхности высоко-ориентированного пиролитического графита (ВОПГ), облученного ионами ^{209}Bi и ^{86}Kr высоких энергий. Изображения структуры поверхности ВОПГ перед (А) и после облучения (В) ионами ^{86}Kr с энергией 305 МэВ до флюенса $F \cdot t = 5 \times 10^{12}$ ион/см² представлены на рис.6. Часть образца (рис.6А) при облучении ионами была перекрыта фольгой с толщиной, превышающей пробег ионов, и не облучалась. Распыление границы между отдельными кристаллитами ВОПГ была изучена детально, используя СТМ метод. На необлученной части ВОПГ можно видеть границу между кристаллитами, а на облученной части (рис.6Б) граница имеет сильно распыленный ионами вид. Перепад высот между поверхностью кристаллита и дном границы (рис.6А) составляет $h = 5 \text{ \AA}$, а на рис.6Б - $h = 47 \text{ \AA}$. Следовательно, распыление границы между кристаллитами ВОПГ происходит, в то время как поверхность кристаллита не имеет особенностей.

Изображение поверхности ВОПГ, облученного ионами ^{209}Bi с энергией 705 МэВ до флюенса $F \cdot t = 10^{12}$ ион/см² приведено на рис.7. Можно видеть кратеры, которые были созданы на поверхности индивидуального кристаллита после облучения ионами ^{209}Bi . Анализ значительного числа СТМ

изображений различных участков поверхности кристаллитов показал, что поверхностная плотность кратеров составляет 2-3 % от полного флюенса ионов ($F \times t = 10^{12}$ ион/см²).

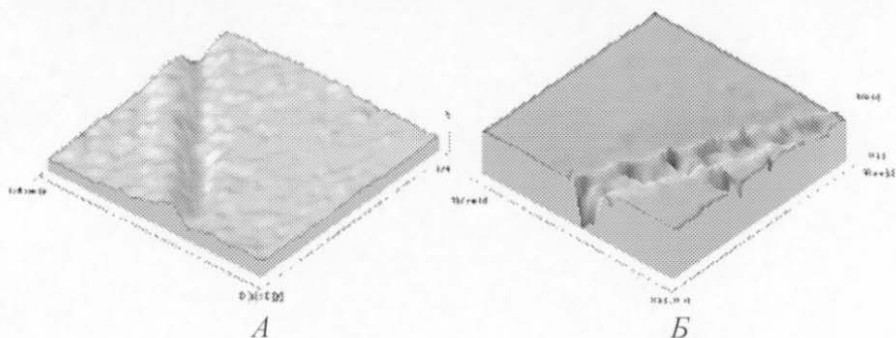


Рис.6. СТМ-изображения исходной (А) и облученной ионами ⁸⁶Kr с энергией 305 МэВ до флюенса $F \times t = 5 \times 10^{12}$ ион/см² (Б) поверхностей. Площади сканирования СТМ составляет 128 нм × 128 нм (А) and 167 нм × 160 нм (Б), а глубина границ кристаллитов: 5 Å (А) и 47 Å (Б).

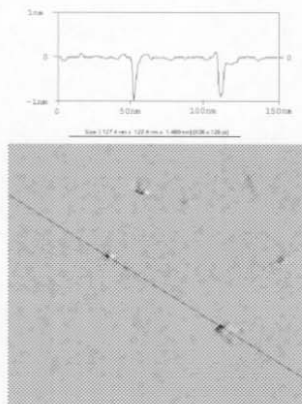


Рис.7. СТМ-изображение поверхности ВОПГ, облученной ионами ²⁰⁹Pb с энергией 705 МэВ до флюенса $F \times t = 10^{12}$ ион/см². На верхнем изображении показан профиль сканирования вдоль линии проведенной на нижнем изображении. Площадь сканирования составляет 127 нм × 127 нм.

Цилиндрическая область возбужденных перегретых электронов формируется вокруг траектории тяжелого иона высокой энергии в твердых телах. Радиус этой области $r_0 \sim 10 \text{ \AA}$ и температура “горячих” электронов достигает значений 20–40 eV. Последующие процессы релаксации возбужденных электронов за счет электрон-электронного и электрон-фононного (электронной теплопроводности) рассеяния приводят в конечном счете к нагреванию решетки в объеме вокруг траектории иона. В случае ВОПГ область охлаждения “нагретых” возбужденных электронов на основе электронной теплопроводности может быть значительно ограничен, поскольку плотность свободных электронов в монокристалле углерода на три порядка величины меньше, чем в металлах и имеет значение $n_e \approx 5 \times 10^{18}$ ‘электрон/см³. Таким образом, значительная доля энергии возбужденных электронов может передаваться ионизованным атомам решетки в этой области возбужденных электронов.

Как и в случае металлов (глава 3) при недостаточном уровне ионизационных потерь энергии иона ⁸⁶Kr (неупругие потери энергии ионов ⁸⁶Kr с энергией 305 МэВ на поверхности ВОПГ равны $-(dE/dx)_{inel} = 12$ кэВ/нм) не происходит изменений структуры поверхности кристаллита ВОПГ, в то время как этого уровня достаточно для распыления границ между кристаллитами (рис.6), что обусловлено высокой концентрацией дефектов структуры в этих областях.

В то же время уровень ионизационных потерь ионов ²⁰⁹Pb (неупругие потери энергии ионов ²⁰⁹Pb с энергией 705 МэВ на поверхности ВОПГ равны $-(dE/dx)_{inel} = 27/6$ кэВ/нм) сравнимы с пороговыми значениями энергии для распыления для поверхности отдельных кристаллитов. Но, по-видимому, это распыление носит термо-флуктуационный характер.

В пятой главе приведены экспериментальные результаты и оценки температур в треках тяжелых ионов в монокристаллическом кремнии, облученном ионами ⁸⁶Kr с энергией 253 МэВ. Флюенсы облучения имели значения $(F \cdot t)_1 = 10^{14}$ and $(F \cdot t)_2 = 2.6 \times 10^{15}$ ion/cm². Изменение структуры

поверхности монокристалла кремния до и после облучения было изучено с использованием атомно-силовой микроскопии (АСМ). На рис.8 представлено трехмерное изображение исходной поверхности (рис.8А) и профиль поверхности (нижнее изображение), просканированный вдоль линии, отмеченной на верхнем двумерном изображении (рис.8Б). Из рис.8 можно видеть, что неоднородности рельефа, то есть перепад высот между выступающими частями и впадинами на исходной поверхности Si меньше, чем $h = \pm 0.1$ нм. Это показывает, что качество исходной поверхности очень хорошее. Трехмерное изображение поверхности кремния, облученного ионами ^{86}Kr с энергией 253МэВ до флюенса $Fl = 2.6 \times 10^{15}$ ион/см² приведено на рис.9А. На нижнем изображении (рис.9Б) представлен профиль сканирования вдоль линии, показанной на правом верхнем двумерном изображении (рис.9Б). Как видно, перепад высот рельефа на облученной поверхности кремния находится в интервале $h < \pm 2.0$ нм, то есть облученная поверхность приобрела значительную шероховатость, в сравнении с гладкой исходной поверхностью (см. рис.8Б). В этой же главе проведены оценки неупругого распыления Si при облучении быстрыми ионами ^{86}Kr и сравнение с упругим распылением Si под действием ионов ^{40}Ar с энергией 300 эВ.

В заключении описаны результаты, полученные в диссертационной работе. А также выделены основные результаты, выдвигаемые на защиту.

Кратко можно отметить, что в диссертации представлены результаты по неупругому распылению ряда чистых металлов при облучении тяжелыми ионами в неупругой области потерь энергии. Однозначно показано, что коэффициенты распыления сильно зависят от состояния облучаемой поверхности, исходной концентрации дефектов в твердых телах, а также от уровня дефектов, радиационного происхождения, накопленных в процессе облучения. Наличие дефектов значительно усиливает влияние неупругих потерь энергии быстрых тяжелых ионов и следовательно распыление материала. При этом происходит образование неоднородностей на поверхности, что особенно заметно на нержавеющей хромо-никелевой стали

и монокристаллическом кремнии. Распыление границ зерен имеет существенно большие коэффициенты распыления, в сравнении с распылением поверхностей отдельных кристаллитов.

Несомненная важность исследования проблем неупругого распыления в ядерных технологиях, ускорительной технике и ядерной энергетики, в процессах ионной имплантации при создании новых материалов вызывает необходимость проведения дальнейших экспериментов и развития новых теоретических подходов в данной области радиационных исследований.

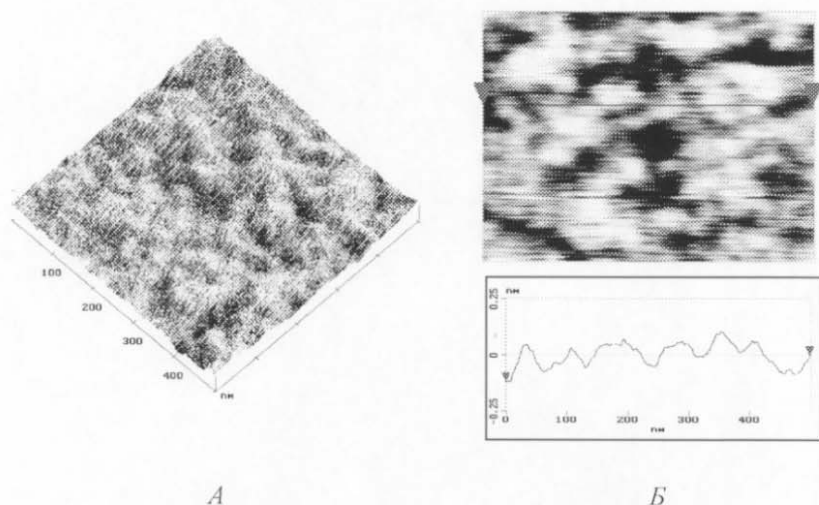


Рис.8. Трехмерное АСМ изображение необлученной поверхности монокристаллического Si (А) и профиль рельефа (нижнее изображение) вдоль линии сканирования, отмеченной на верхнем изображении (Б).

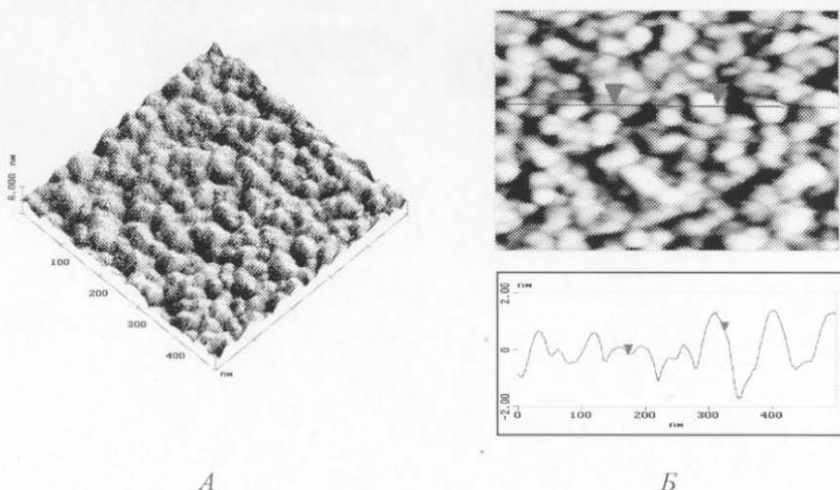


Рис.9. Трехмерное АСМ изображение А поверхности Si, облученной ионами ^{86}Kr с энергией 253 МэВ до флюенса 2.6×10^{15} ион/см² (А) и профиль рельефа вдоль линии, отмеченной на двумерном изображении (Б).

Основные результаты диссертации опубликованы в следующих работах:

1. А.Ю.Дидык, А.Л.Суворов, А.Е.Степанов, В.К.Семина, Ю.Н.Чеблуков, А.Халил. Особенности испарения атомов углерода в пиролитическом графите при облучении ионами криптона с энергией 245 МэВ. Материалы 10-ой Международной конференции “Радиационная физика твердого тела”, Севастополь, Украина, 2000, с.176-182.
2. А.Ю.Дидык, В.К.Семина, А.Халил, Н.А.Васильев, А.Е.Степанов, А.Л.Суворов, Ю.Н.Чеблуков. Влияние облучения тяжелыми ионами на распыление никеля. Письма в журнал технической физики, 2000, 26, № 2, с.1-7.
3. А.Ю.Дидык, А.Л.Суворов, Ю.Н.Чеблуков, В.К.Семина, А.Е.Степанов, А.Халил. Изменение структуры поверхности никеля, вольфрама и хромоникелевой стали (X18Н10Т) облученных высокими флюенсами ионов

криптона высокой энергии. Материалы 9-ой Международной конференции “Радиационная физика твердого тела”, Севастополь, Украина, 1999, с.482-491.

4. А.Ю.Дидык, А.Л.Суворов, В.К.Семина, А.Е.Степанов, Ю.Н.Чеблук, А.Халил. Изменение структуры поверхности Ni, W и хромо-никелевой стали, облученных ионами Kr до высоких флюенсов. Сообщение ОИЯИ P14-99-264, 1999, Дубна, ОИЯИ, 7 стр.

5. A. Yu. Didyk, V. K. Semina, A. E. Stepanov, A. L. Suvorov, Yu. N. Cheblukov, A. Khalil. Changes of surface structure on Ni, W and chromium-nickel steel, irradiated with swift krypton ions. *Advanced Materials*, 2001, No 1, pp.58-64.

6. Yu. N. Cheblukov, A. Yu. Didyk, A. Khalil, V. K. Semina, A. E. Stepanov, A. L. Suvorov, N. A. Vasiliev. Sputtering of metals by swift heavy ions with high fluence. In the book: *Materials of 15th international conference: “Ion-Surface Interaction ISI-2001”*, Zvenigorod, Russia, 2001, pp.171-174.

7. Yu. N. Cheblukov, A. Yu. Didyk, A. Khalil, V. K. Semina, A. E. Stepanov, A. L. Suvorov, N. A. Vasiliev. Sputtering of metals by heavy ions in the inelastic energy loss, *Vacuum*, 2002, V.66, №2, pp.133-136.

8. Yu. N. Cheblukov, A. Yu. Didyk, A. S. Fedotov, A. Khalil, V. K. Semina, A. E. Stepanov., A. L. Suvorov, N. A. Vasiliev. Sputtering of metals by heavy ions at the inelastic energy loss range. *Proceedings of the IVth School and Workshop on Cyclotrons and Applications*, Cairo, Egypt, 2002, pp.122-132.

9. А.Ю.Дидык, В.К.Семина, А.Халил, Н.А.Васильев, А.Э.Степанов, А.Л.Суворов, Ю.Н.Чеблук. Распыление никеля тяжелыми ионами при высоких флюенсах облучения. Материалы 9-ой Международной конференции “Радиационная физика твердого тела”, Севастополь, Украина, 1999, с.118-123.

10. В.К.Семна, А.Ю.Дидык, В.А.Алтынов, А.Л.Суворов, А.С.Федотов, Ю.Н.Чеблук, А.Халил. Изменения структуры аморфных сплавов при облучении тяжелыми ионами высоких энергий. Материалы 10-ой

Международной конференции “Радиационная физика твердого тела”, Севастополь, Украина, 2001, с.10-15.

11. А.Ю.Дидык, В.К.Семина, А.Хофман, В.А.Алтынов, А.Халил. Современные методы исследования структуры поверхности полупроводниковых монокристаллов при облучении тяжелыми ионами высоких энергий. А. Yu. Didyk, V.K. Semina, A. Hofman, V. A. Altynov, A. Khalil. Вопросы атомной науки и техники. Сер.: Физика радиационных эффектов в радио-электронных приборах. Москва-2003, Королев, № 4, с.86-89.

12. А.Ю.Дидык, В.Н.Робук, В.К.Семина, А.Халил, А.Хофман. Применение модели термического пика в трехмерной решетке при облучении быстрыми тяжелыми ионами. В книге: Материалы XVI Международной конференции по физике радиационных явлений и радиационному материаловедению. Алушта, Крым, 6-11 сентября, 2004, с.107-108.

13. А.Ю.Дидык, В.Н.Робук, В.К.Семина, А.Халил, А.Хофман. Применение модели термического пика в трехмерной решетке при облучении быстрыми тяжелыми ионами. Вопросы атомной науки и техники (ВАНТ), серю: физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение. Украина, Харьков, 2005, № 3, с.55-63.

14. Л.А.Власукова, А.Ю.Дидык, Ф.Ф.Комаров, А.Халил, А.Хофман. Влияние электронов и быстрых тяжелых ионов Influence of electron and swift heavy ions $^{86}\text{Kг}$ на распухание и распыление монокристалла InP: Материалы XV-ой Международной конференции “Радиационная физика твердого тела”, Севастополь, Украина, 2005, с.141-159.

15. Л.А.Власукова, А.Ю.Дидык, Ф.Ф.Комаров, А.Халил, Ю.Н.Ювченко. Особенности изменений структуры поверхности монокристалла GaAs, облученного электронами и тяжелыми ионами $^{86}\text{Kг}$ высокой энергии.. Материалы XVII Международной конференции: Взаимодействие ионов с поверхностью (ВИП-2005), Москва, Звенигород, август, 2005, с.103-106.

16. Л.А.Власукова, А.Ю.Дидык, Ф.Ф.Комаров, А.Халил. Влияние облучения электронами и ионами $^{86}\text{Kг}$ высоких энергий на изменения структуры поверхности InP. Материалы XXXV Международной конференции. Физика взаимодействия заряженных частиц с кристаллами, Москва, МГУ, май, 2005, с.112.

17. Л.А.Власукова, А.Ю.Дидык, Ф.Ф.Комаров, А.Халил. Изменения структуры поверхности и объемные эффекты в GaAs, облученном электронами и ионами $^{86}\text{Kг}$ высокой энергии.. Материалы XXXV Международной конференции. Физика, облученном электронами и ионами взаимодействия заряженных частиц с кристаллами, Москва, МГУ, май, 2005, с.113.

Получено 21 ноября 2005 г.

Отпечатано методом прямого репродуцирования
с оригинала, предоставленного автором.

Подписано в печать 24.11.2005.

Формат 60 × 90/16. Бумага офсетная. Печать офсетная.

Усл. печ. л. 1,62. Уч.-изд. л. 1,65. Тираж 100 экз. Заказ № 55118.

Издательский отдел Объединенного института ядерных исследований
141980, г. Дубна, Московская обл., ул. Жолио-Кюри, 6.

E-mail: publish@pds.jinr.ru

www.jinr.ru/publish/