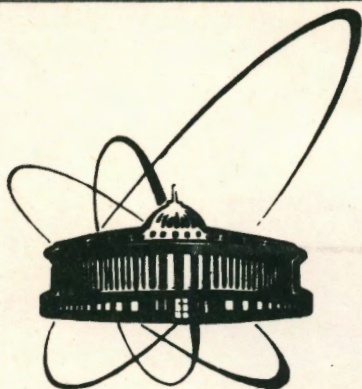


90-352



ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ
ДУБНА

Б902

P14-90-352

В.Н.Бугров, С.А.Карамян

ПОВРЕЖДЕНИЕ МОНОКРИСТАЛЛА ВОЛЬФРАМА
БЫСТРЫМИ ТЯЖЕЛЫМИ ИОНАМИ

Направлено в журнал "Физика и химия обработки
материалов"

1990

Введение

Воздействие тяжелых ионов на монокристаллы неплохо изучено в области энергий $E_i \lesssim 100$ кэВ, типичных для имплантации. При достаточно высокой энергии $E_i/A_i \gtrsim 1$ МэВ/а.е.м. данные ограничены. Не исключено обнаружение новых особенностей отклика среды на прохождение высокоионизирующих частиц. Энергия, переданная решетке кристалла и электронному газу, в случае быстрых ионов существенно отличается от имеющей место при традиционной имплантации атомов в материалы.

Для полупроводниковых монокристаллов недавно проведены систематические измерения [1,2] и выявлена аномально низкая повреждающая способность ионов Хе с энергией $\approx 0,9$ МэВ/а.е.м. Аномалия объясняется в терминах рекристаллизации дефектной области трека за счет быстрого термического отжига, связанного с высоким значением неупругого энерговыделения. Важно установить, является ли этот процесс особенностью полупроводников или он происходит также в металлах. Некоторые указания на частичный отжиг дефектов в металлах за счет высокого $(dE/dx)_e$ иона получены

ранее [3,4]. В настоящей работе изучено повреждение монокристалла вольфрама быстрыми ионами с использованием прямого кристаллографического метода, основанного на эффекте теней.

1. Методика и результаты

Одной из традиционных задач радиационного материаловедения являются измерения дозовых зависимостей механических и электромагнитных свойств металлов и сплавов при экспозиции образцов ядерными излучениями. Данная программа расширена в последние годы в область энергии ионов $E_1 = 1-100$ МэВ/а.е.м. [5-11]. Ставится, в частности, задача моделировать радиационную стойкость конструкционных материалов ядерных энергетических установок.

Для понимания механизма ионных воздействий информативность таких измерений ограничена трудностями интерпретации. Глубокие процессы повреждения и рекристаллизации более перспективно исследовать с помощью кристаллографических или ядерных методов, позволяющих получать количественную информацию о совершенстве дальнего порядка решетки и о местоположении различных атомов. Монокристаллы представляют собой элитную семью среди всего многообразия конденсированных образцов. Картина поведения их при радиационном воздействии может быть признана образцовой. Менее совершенные материалы показывают не столь ясную картину из-за наложения процессов, связанных с микрогрануляцией вещества.

К настоящему времени исследовано воздействие быстрых ионов на монокристаллы Ge [1], Si [2], UO_2 [12] и алмаза [13]. Использован метод, основанный на эффекте теней. Угловое распределение заряженных продуктов ядерных реакций на монокристаллической мишени содержит теневые минимумы интенсивности в направлениях кристаллографических осей и плоскостей [14]. Фиксация пространственного распределения частиц, вылетающих из кристалла,

дает теневую рефлексограмму. Ее геометрическая структура определяется симметрией решетки, контрастность - степенью совершенства кристалла, а угловая ширина отдельных рефлексов - потенциалом взаимодействия частиц с элементарными плоскостями и рядами атомов в кристалле. Измеряя контрастность (интенсивность) теневого рефлекса, можно получить количественные данные о степени совершенства решетки монокристалла, а именно: определить долю разупорядоченной фазы в объеме вещества. Это является основой используемого метода измерения степени повреждения кристаллов в зависимости от флюенса ионов.

Исследования проведены на пучках ионов ^{16}O с энергией 137 МэВ, ^{22}Ne - 175 МэВ, ^{40}Ar - 25 МэВ и ^{129}Xe - 122 МэВ. Отполированные монокристаллические образцы W ориентации (110) облучались при комнатной температуре коллимированным пучком ионов вдоль направления, не совпадавшего с главными кристаллографическими осями и плоскостями. Нагрев образца за счет мощности пучка незначителен. Параметры пучка ионов после прохождения коллиматора следующие: диаметр 1 мм, угловое расхождение $< 0,5^\circ$, интенсивность не более 10^{10} с^{-1} , импульсная мощность ≤ 1 Вт.

Теневая рефлексограмма фиксировалась в широкоугольной геометрии трековыми детекторами из стекла. Детектор регистрировал осколки деления в облучениях ионами ^{16}O и ^{22}Ne , рассеянные ионы в случае ^{40}Ar и ядра отдачи рассеяния вместе с рассеянными ионами в случае ^{129}Xe . Химическое проявление треков на поверхности детектора приводило к визуализации теневой рефлексограммы при условии достаточно высокой плотности треков. Определялись координаты центра осевого рефлекса, а затем производилось сканирование трекового детектора и подсчет плотности треков в оптическом микроскопе. Таким образом определялась форма теневого минимума и его основные параметры: выход в минимуме χ_0 и угловая полуширина $\psi_{1/2}$.

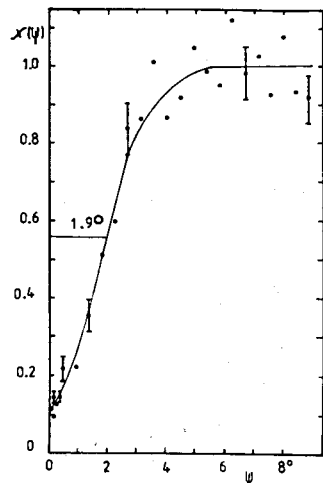


Рис. 1. Форма теневого минимума, зафиксированного при облучении W ионами ^{129}Xe (122 МэВ) и регистрации продуктов рассеяния в окрестности оси $\langle 110 \rangle$, направленной под углом 67° к пучку.

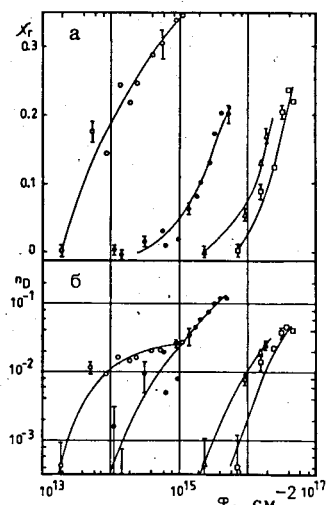


Рис. 2. Вклад χ_r повреждения в теньевой выход (а) и доля n_D разупорядоченной фазы (б) для монокристалла вольфрама в зависимости от флюенса ионов: ^{16}O с энергией 137 МэВ (□), ^{22}Ne - 175 МэВ (Δ), ^{40}Ar - 25 МэВ (●) и ^{129}Xe - 122 МэВ (○). Линии соединяют точки.

На рис. 1 для примера показан профиль теневого минимума $\langle 110 \rangle$, зафиксированного при облучении монокристалла W ионами Xe. Прослежено изменение величин χ_0 и $\psi_{1/2}$ с ростом флюенса Φ ионов для кристаллографических осей $\langle 110 \rangle$ и $\langle 111 \rangle$. При увеличении Φ растёт выход χ_0 , можно извлечь параметр χ_r , показывающий в чистом виде вклад повреждения в теньевой выход. Функция $\chi_0(\Phi)$ преобразовывалась по методике [15] в зависимость доли n_D разупорядоченной фазы в объёме монокристалла от флюенса. В преобразовании $\chi_0(\Phi) \rightarrow n_D(\Phi)$ учитывается вклад ядерной реакции на смещенных атомах и деканализирование на дефектном слое.

На рис. 2 показаны дозовые зависимости $\chi_r(\Phi)$ и $n_D(\Phi)$. При переходе от одной бомбардирующей частицы к другой основное изменение состоит в изменении масштаба дозы, т.е. имеет место скейлинг. Отсюда ясно, что обнаруженная для полупроводников аномалия повреждения [1,2] ионами Xe не выявляется в случае вольфрама.

Необходимо детализировать вопрос о толщине слоя монокристалла, к которой относятся полученные данные. Толщина t активного слоя мишени по направлению пучка вычислена на основе баланса [12] потерь энергии падающей и регистрируемой частиц при учете порога регистрации ядер $P \approx 5$ МэВ стеклянным детектором. Имеет место соотношение $t \ll R \ll l$, где R - проекционный пробег падающих ионов, l - толщина монокристаллического образца. В таблице приведены условия облучений и даны численные значения t , а также значения средней по t энергии ионов. Таким образом, при определении значений $n_D(\Phi)$ достоверно известен интервал усреднения по толщине слоя и по энергии ионов.

2. Обсуждение результатов

Быстрая тяжелая частица теряет энергию в веществе, главным образом, за счет взаимодействия с электронами. Энергия,

передаваемая непосредственно решетке (ядерные потери), на несколько порядков величины меньше. В конце пробега, однако, ядерные потери могут сравниваться и превосходить электронные. Этот вариант неактуален в нашем случае, т.к. изучено повреждение слоя в начале пробега быстрых ионов. Пик электронных возбуждений создается за время $\approx 10^{-15}$ с, и дальнейшая его диссипация может зависеть существенно от свойств среды. Точные теоретические модели пока не созданы. Чаще всего предполагают, что в металлах из-за высокой плотности свободных электронов энергия диссипирует в пределах электронной подсистемы и тепловой пик не создается. Пик смещений развивается только в конце пробега иона. Отсюда следует, что главным источником повреждения металлов должно быть первичное выбивание атома за счет ядерного рассеяния и формирование каскада смещений, сопутствующего ядру отдачи. Эта модель, отождествляющая дефекты со смещенными при рассеянии атомами, достаточно проста для теоретического анализа. Сечение образования смещенного атома σ_D может быть вычислено при использовании минимального числа "свободных" параметров.

Уместно упомянуть несколько другую схему передачи энергии в кинетическую энергию атомов [16,17]. Энергия, затраченная частицей на ионизацию атома, включает в себя нескомпенсированную кулоновскую энергию ионизированного атома. После ионизации потенциал, действующий на атом, меняется, атом уже не удерживается в узле решетки и может приобретать значительное смещение от исходного положения. Такая схема передачи энергии атомам решетки, так же как и модель кулоновского ионного взрыва [18], требует длительного, $> 10^{-13}$ с, существования атома в ионизированном состоянии. В металлической среде компенсация положительного заряда иона должна происходить быстро. Оговоримся, что речь идет о монолитной среде, в мелкозернистой фазе возможны более сложные процессы. При обсуждении результатов по повреждению

вольфрама за основу будет взята модель генерации смещенных атомов в актах рассеяния падающей частицы на ядрах решетки.

Для расчета значений σ_D использована формула из работы [2], включающая реалистическое экранированное сечение рассеяния и учитывающая размножение смещенных атомов при энергии ядра отдачи $T \geq 2E_d$. Пороговая энергия смещения атома в вольфраме была взята равной $E_d = 40$ эВ согласно [19]. Повреждающая способность ионов систематизирована в зависимости от сечения σ_D . В качестве количественной меры степени повреждения на единицу флюенса выбрана производная функции $n_D(\Phi)$ при малых Φ . На рис. 36 показаны извлеченные из эксперимента значения $dn_D/d\Phi$ в зависимости от сечения σ_D . Видно пропорциональное увеличение повреждающей способности ионов с ростом σ_D . Т.е. подтверждается, что при облучении вольфрама дефекты образуются за счет ядерного рассеяния быстрых ионов. Не противоречит этому утверждению также зависимость $dn_D/d\Phi$ от удельных потерь энергии ионов dE/dx , показанная на рис. 36. С ростом атомного номера иона Z_1 монотонно растет как σ_D , так и dE/dx . Отсюда ясно, что ход точек на рис. 36 является закономерным.

Вид зависимостей, показанных на рис. 3а и 3б, существенно отличается от полученных [1,2] для полупроводниковых монокристаллов Si и Ge. В случае вольфрама не наблюдается аномального уменьшения повреждающей способности для очень тяжелых ионов типа Xe. Т.е. нет оснований предполагать рекристаллизацию вольфрама за счет быстрого термического отжига вдоль трека иона. Речь идет об отжиге дефектов, устойчивых при комнатной температуре. В работе [3] обнаружен стимулированный электронными потерями $(dE/dx)_e$ отжиг дефектов в Ni, нестабильных при низкой температуре (1-я стадия восстановления). Результаты [3] означают, что в области трека иона происходит нагрев на несколько десятков градусов. Для отжига дефектов, стабильных при комнатной

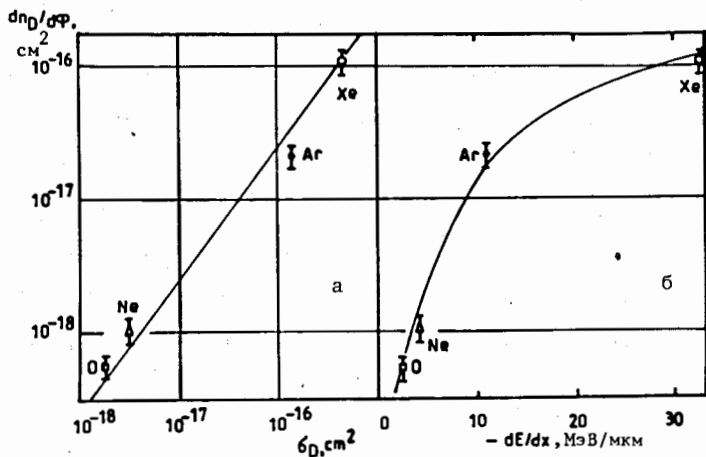


Рис. 3. Повреждающая способность ионов (на единицу флюенса) в зависимости от вычисленного сечения σ_D смещения атомов (а) и от удельных потерь энергии dE/dx ионов (б).

Таблица

Условия облучения монокристалла вольфрама

Ион	Угол падения град.	Регистр. частица	Крист. ось	Угол наблюдения, град.	Толщина слоя t мкм	\bar{E} иона МэВ
^{16}O	51	оск. дел.	<111>	164	3,85	131
^{22}Ne	56	оск. дел.	<111>	159	3,70	166
^{40}Ar	56	^{40}Ar	<111>	159	0,60	19
^{129}Xe	54	$^{129}\text{Xe}, \text{W}$	<110>	67	0,82	107

температуре, требуется нагрев до значительно более высокой температуры. Поэтому противоречия между результатами нашей работы для W и [3] для Ni нет.

При сравнении поведения W и Ni, Si, Ge нужно учитывать тривиальные причины, в частности высокую термостойкость вольфрама. Отсюда можно предположить замораживание дефектов и отсутствие всех видов отжига при комнатной температуре. Из эксперимента, однако, следует, что стопроцентной фиксации дефектов в W не происходит. Экспериментально полученные значения n_D по абсолютной величине меньше в несколько раз, чем вычисленные по формуле $n_D = 1 - \exp(-2\sigma_D \phi)$. Это означает, что значительная часть созданных в вольфраме дефектов отжигается при комнатной температуре за счет макроскопического термического отжига, в соответствии с поведением других металлов. Следовательно, в отношении макротжига дефектов вольфрам не показывает качественного отличия от других монокристаллов, однако микропроцессы в области трека высокоионизирующей частицы в вольфраме развиваются иначе, чем в полупроводниках Si, Ge. Тип отклика, связанный с сильным микронагревом и рекристаллизацией за счет высокого $(dE/dx)_e$ иона, видимо, не имеет места в вольфраме, в отличие от Si и Ge [1,2]. Это принципиальное различие можно объяснить особенностями электронного спектра вещества.

Согласно теоретическим представлениям в металлах акустическая мода взаимодействия δ -электронов подавлена и их энергия не передается решетке. Электронные потери энергии иона $(dE/dx)_e$ при этом оказываются нейтральными в смысле воздействия на решетку. Они не должны вызывать ни ее повреждения, ни отжига. В случае изоляторов, напротив, ожидается сильная связь электронной системы с решеткой. Возможен нагрев [20] вплоть до $T > 10^4$ К и повреждение кристалла за счет $(dE/dx)_e$. Для полупроводников

теоретическое рассмотрение не дает конкретных предсказаний, но не исключен нагрев до умеренной температуры в зоне трека частицы.

Недавно опубликованы новые результаты о вкладе $(dE/dx)_e$ в повреждение некоторых металлических образцов [9,10]. Вероятно, имеет место многообразие вариантов поведения, зависящего как от электрических свойств, так и от структурных особенностей образцов.

Выводы

Изучено воздействие быстрых ионов на монокристалл W, и подтверждена модель генерации дефектов за счет ядерного рассеяния. Не обнаружен вклад электронных потерь энергии в повреждение вольфрама. В случае высокоионизирующих частиц, типа Хе, установлено различие поведения металлического вольфрама и полупроводников Si, Ge. Показано, что при исследовании отклика конденсированной среды на прохождение высокоионизирующих частиц наиболее перспективно использовать прямые кристаллографические методы для элитных монокристаллических образцов.

Авторы благодарны Ю.Ц.Оганесяну за интерес к работе, Г.Отто за предоставление монокристалла W и группе эксплуатации циклотрона У-300 за получение пучков ионов.

Литература

1. Karamyan S.A., Oganessian Yu.Ts., and Bugrov V.N. The Effect of High-Energy Ions Heavier than Argon on a Germanium Single Crystal and a New Mechanism for Autorecrystallization // Nucl. Instr. & Meth., 1989, V.В43, P.153-158.
2. Бугров В.Н., Карамян С.А. Повреждение и восстановление монокристалла Si при воздействии быстрых тяжелых ионов // Изв. АН СССР, сер.физ., 1990, Т.54, № 5.
3. Iwase A. et al. Anomalous Reduction of Stage I Recovery in Nickel Irradiated with Heavy Ions in Energy Range 100-120 MeV // Phys. Rev. Lett., 1987, V.58, P.2450-2453.
4. Dunlop A., Lesueur D., and Dural J. Damage Production in Iron During High-Energy Ion Irradiation: Experimental and Theoretical Determination // Nucl. Instr. & Meth., 1989, V.В42, P.182-192.
5. Воробьев Е.Д. и др. Влияние высокоэнергетичного ионного облучения на ползучесть алюминия // ЖТФ, 1983, Т.53, С.1804-1808.
6. Дидык А.Ю. и др. Радиационное упрочнение металлов, облученных тяжелыми ионами // ЖТФ, 1989, Т.59, № 5, С.107-111.
7. Havancsak K. et al. 233 MeV Ne Ion Irradiation Effects on the Mechanical Properties of Copper // Phys. Stat. Sol., 1988, V.а106, P.371-378.
8. Klaumünzer S., and Schumacher G. Dramatic Growth of Glassy $Pd_{80}Si_{20}$ During Heavy-Ion Irradiation // Phys. Rev. Lett., 1983, V.51, P.1987-1990.
9. Paumier E. et al. Anomalous Enhancement in Defect Production in Gallium Irradiated by High-Energy Xenon Ions // Europhys. Lett., 1989, V.10, P.555-562.
10. Audouard A. et al. The Contribution of Electronic Energy Loss to Radiation Damage in Metallic Materials // Radiation Effects and Defects in Solids, 1989, V.110, P.113-115.

11. Audouard A. et al. High-Energy Heavy-Ion Irradiation of $\text{Fe}_{85}\text{B}_{15}$ Amorphous Alloy: Evidence for Electronic Energy Loss Effect// *Europhys. Lett.*, 1987, V.3, P.327-332.
12. Бугров В.Н., Виноградов В.Г., Карамян С.А. Эксперименты по определению повреждающего воздействия ионов ^{22}Ne (172 МэВ) на монокристалл UO_2 // *ФизХОМ*, 1988, № 1, С.22-27.
13. Дидык А.Ю., Зайцев А.М., Карамян С.А. Воздействие быстрых ионов ^{40}Ar и ^{129}Xe на монокристалл алмаза // *Кр. сообщения ОИЯИ*, 1989, № 4(37)-89, С.44-49.
14. Тулинов А.Ф. Влияние кристаллической решетки на некоторые атомные и ядерные процессы // *УФН*, 1965, Т.87, С.585-598.
15. Ziegler J.F. Determination of the Lattice Disorder in Crystal by Nuclear Backscattering // *J.Appl. Phys.*, 1972, 43, P.2973-2981.
16. Watson C.C., and Tombrello T.A. A Modified Lattice Potential Model of Electronically Mediated Sputtering // *Rad. Effects*, 1985, v.89, P.263-283.
17. Баранов И.А. и др. Неупругое распыление твердых тел ионами // *УФН*, 1988, Т.156, С.477-511.
18. Fleischer R.L., Price P.B., and Walker R.M. Ion Explosion Spike Mechanism for Formation of Charge-Particle Tracks in Solids // *J. Appl. Phys.*, 1965, V.36, P.3645-3652.
19. Kenik E.A., and Mitchell T.E. Orientation Dependence of the Threshold Displacement Energy in Copper and Vanadium // *Phil. Mag.*, 1975, V.32, P.815-831.
20. Macfarlane R.D., and Torgerson D.F. Ion Temperature of Fission-Fragment Tracks in CsBr Films // *Phys. Rev. Lett.*, 1976, V.36, P.486-488.

Рукопись поступила в издательский отдел
24 мая 1990 года.

Бугров В.Н., Карамян С.А.
Повреждение монокристалла вольфрама
быстрыми тяжелыми ионами

P14-90-352.

Исследовано повреждение монокристаллического вольфрама под действием тяжелых ионов вплоть до Хе при энергии 0,6 - 8,0 МэВ/а.е.м. Применен прямой кристаллографический метод, основанный на эффекте теней. Обнаружен скейлинг дозовых зависимостей повреждений для разных ионов. Изменение повреждающей способности ионов соответствует модели генерации дефектов за счет ядерного рассеяния. Не обнаружен вклад электронных потерь энергии ионов в повреждение вольфрама.

Работа выполнена в Лаборатории ядерных реакций ОИЯИ.

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна 1990

Перевод авторов

Bugrov V.N., Karamyan S.A.
Damage Produced by Swift Heavy Ions
in Monocrystalline Tungsten

P14-90-352

The damage of monocrystalline tungsten produced by heavy ions up to Xe at energy from 0.6 to 8.0 MeV/a.m.u. is studied. The direct crystallographic method based on the crystal-blocking effect is applied. The scaling of the dose dependences of the damage for different ions is observed. The variation of the ion damaging power corresponds to the model of the defects generation as a result of nuclear scattering. The contribution of ions electronic energy losses to the tungsten damage is not found.

The investigation has been performed at the Laboratory of Nuclear Reactions, JINR.

Preprint of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna 1990