

02;06;13

Образование междоузельных атомов в поверхностных слоях вольфрама при имплантации гелия

© О.В. Дудка, В.А. Ксенофонтов, А.А. Мазиллов, Е.В. Саданов

Национальный научный центр „Харьковский физико-технический институт“ НАНУ, Харьков, Украина
E-mail: ksenofontov@kipt.kharkov.ua

Поступило в Редакцию 7 июня 2013 г.

Методом полевой ионной микроскопии исследована атомная структура поверхности и приповерхностных областей совершенного бездислокационного вольфрама, облученного ионами гелия с энергией ниже порога смещения. Обнаружен выход из объема собственных междоузельных атомов, образующихся в результате процессов вытеснения атомов вольфрама из узловых решеточных позиций атомами внедренного гелия. Показано, что большие концентрации гелия и силы зеркального изображения оказывают существенное влияние на развитие этих процессов. В приповерхностном слое облученного металла обнаружены обедненные зоны, состоящие из гелий-вакансионных комплексов.

Обработка поверхности низкоэнергетичными ионами инертных газов с целью очистки, ионного травления и формирования специальных поверхностных конфигураций является одним из наиболее распространенных технологических приемов. Для дальнейшего совершенствования методов целенаправленного радиационного воздействия необходимы данные о структурном состоянии облученной поверхности на атомном уровне. Эта информация также полезна для решения проблемы стабильности автокатодов, широко применяемых в прецизионных электронных устройствах и сильноточной электронике [1–3]. Ранее с использованием высокоразрешающих методик исследовались процессы объемного дефектообразования [4] и поверхностной самодиффузии, индуцированной низкоэнергетичной ионной бомбардировкой [5,6]. В последнее десятилетие сделаны попытки изучения элементарных актов взаимодействия низкоэнергетичных частиц с поверхностью методами туннельной сканирующей микроскопии и математического моделирования [7,8]. Появились работы, в которых внимание уделено процессам ионной имплан-

тации, сопровождающей низкоэнергетичное облучение [8,9]. Данное ионно-микроскопическое исследование посвящено изучению влияния имплантированного гелия на эффекты эрозии поверхности вольфрама в условиях облучения ионами низкой (подпороговой) энергии.

Эксперименты велись в полевом ионном микроскопе при температуре образцов 78 К. Исследование проводилось на вольфраме марки ВА-1 чистотой 99.98%. Острийные образцы изготавливались методом электрохимического травления из проволочных заготовок диаметром 10 μm . Окончательная очистка и формирование атомно-гладкой поверхности образцов осуществлялись в камере микроскопа путем полевой десорбции и полевого испарения. В качестве изображающего газа использовался гелий, который при облучении исполнял роль бомбардирующих частиц.

Облучение проводилось прямо в камере микроскопа путем смены на образце стандартного для ионной микроскопии положительного потенциала на отрицательный. В данных условиях возникает автоэлектронная эмиссия, в результате которой электроны, туннелирующие из металла в вакуум, ионизуют атомы изображающего газа, присутствующего в камере микроскопа. Образующиеся ионы под действием электрического поля ускоряются в сторону образца и бомбардируют его поверхность. При таком облучении энергетический спектр падающих частиц не является монохроматическим. Расчеты по определению реального спектра энергий частиц, попадающих на вершинную часть образца и их количества были выполнены с использованием аппроксимации Березняка–Слезова [10], учитывающей зависимость сечения ионизации от энергии, а также траектории движения эмитированных электронов и бомбардирующих ионов. На рис. 1 приведено распределение частиц по энергиям, полученное для образца радиусом 250 nm и напряжения -485 V , подаваемого на образец в момент облучения. Для конкретных условий, при которых проводился эксперимент, средняя энергия ионов гелия составила 130 eV, что является недостаточным для образования устойчивых пар Френкеля в объеме.

Количество ионов, попадающих на образец, линейно зависит от плотности изображающего газа и тока автоэлектронной эмиссии. Облучение велось при токах $\sim 0.3\text{--}0.4\ \mu\text{A}$, что обеспечивало расчетную плотность потока падающих на поверхность частиц $\sim 10^{14}\ \text{ion}/(\text{cm}^2 \cdot \text{s})$. С учетом этих значений была выполнена серия облучений от дозы $1.8 \cdot 10^{16}$ до $1.1 \cdot 10^{18}\ \text{ion}/\text{cm}^2$. Анализ результатов облучения прово-

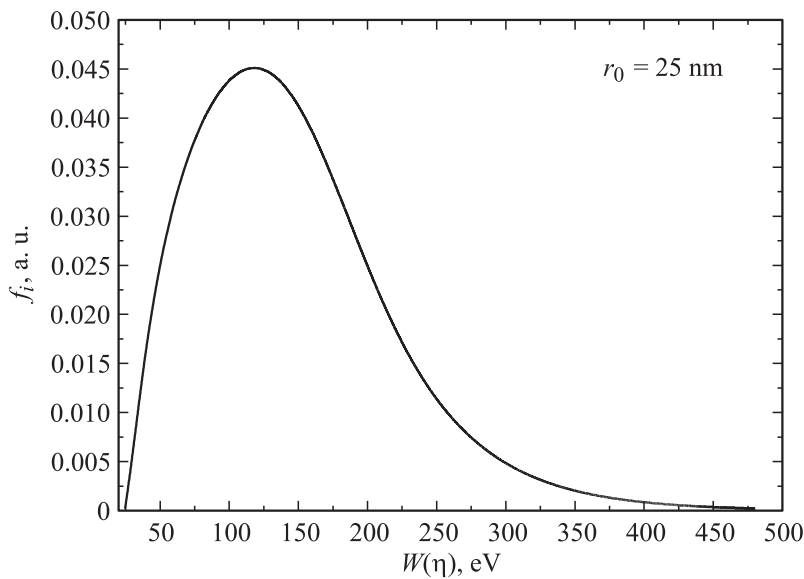


Рис. 1. Распределение частиц по энергиям, полученное для образца радиусом 250 Å и напряжения -485 V, подаваемого на образец в момент облучения.

дился в ионном режиме с использованием импульсного испарения, позволявшего удалять менее одного атомного слоя за один импульс.

На рис. 2, *a, b* приведены ионные изображения поверхности вольфрама до (*a*) и после (*b*) облучения. После радиационного воздействия на ионных изображениях возникает большое число отдельных ярких пятен и групп пятен, вызванных появлением на поверхности атомов, смещенных из регулярных узловых позиций в положения адатомов. Смещенные атомы находятся в изолированных, низкокоординированных поверхностных позициях, которые характеризуются высокой локальной напряженностью поля, что обуславливает их высокий ионно-микроскопический контраст. Такие атомы имеют низкую энергию связи с решеткой и при небольшом повышении напряжения на образце легко удаляются полевым испарением при напряженности поля $48-52$ V/nm, соответствующей полю испарению атомов вольфрама, располагающихся на плоских гранях.

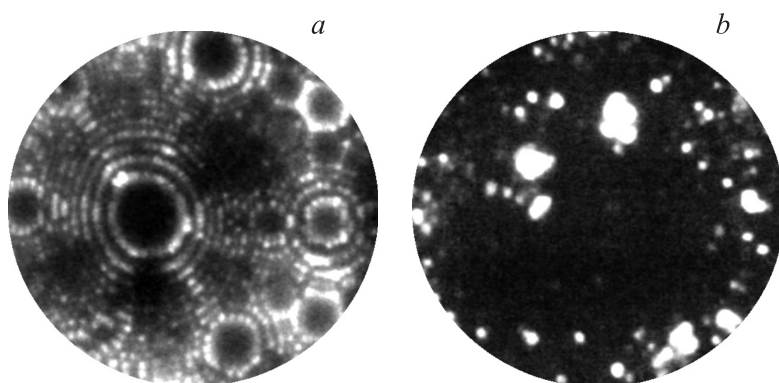


Рис. 2. Ионные изображения поверхности вольфрама до (a) и после (b) облучения.

Следует отметить, что только часть смещенных атомов возникала непосредственно в момент бомбардировки и была выявлена при подъеме напряжения. Появление примерно 50% адатомов и основной доли больших групп, состоящих из нескольких адатомов, было зафиксировано уже после облучения непосредственно в процессе исследования. Отдельные атомы и группы атомов, появлялись на поверхности после удаления нескольких атомных слоев. Как правило, это происходило с некоторой задержкой по времени, в ряде случаев достигающей 20 min от момента испарения. На рис. 3, a, b приведена серия ионных изображений, демонстрирующих случай, в котором после испарения 7 поверхностных слоев было зафиксировано появление на поверхности с интервалом в 10 s двух крупных групп, состоящих из 15 и 10 адатомов. Изображение (рис. 3, c) получено при пониженной напряженности поля для усиления контраста появившихся адатомов. Дальнейшее испарение образца выявило внутри кристалла на глубине 2–7 атомных слоев от поверхности существование дефектов вакансионного типа, располагающихся строго под группами появившихся атомов. Анализ показал, что обнаруживаемые дефекты по структуре близки к обедненным зонам. В связи с тем, что обедненные зоны характеризуются относительно высокой концентрацией вакансий, полевое испарение приводит к избирательному удалению материала из дефектных областей. В этом случае

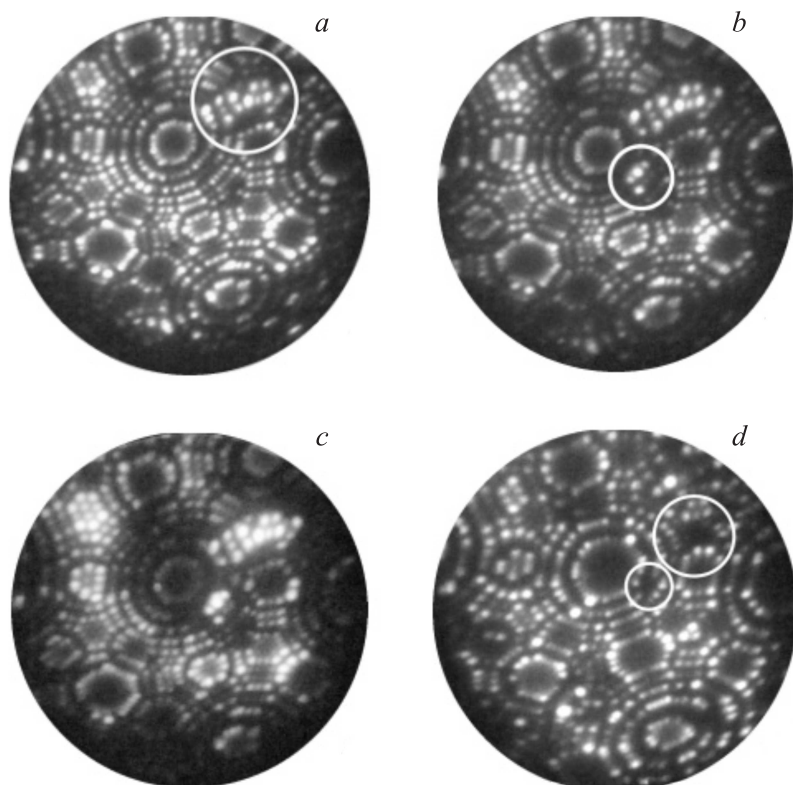


Рис. 3. Серия ионно-микроскопических изображений, демонстрирующая последовательный выход из объема двух групп междоузельных атомов (*a, b, c*), и обнаруженные под ними обедненные зоны, состоящие из вакансий, заполненных гелием (*d*). Изображение (*c*) получено при пониженной напряженности электрического поля.

на поверхности формируются участки в форме впадины, где ионизация не происходит, в результате чего обедненные зоны наблюдаются на изображении как темные области, хорошо выявляемые на общем фоне (рис. 3, *d*).

Принимая во внимание то, что поступление атомов вольфрама извне исключено, появление новых атомов на поверхности уже после

облучения может быть следствием только одного процесса — выхода их из объема. Данные атомы проходят стадию междоузельного состояния. Физическая причина и энергетика такого процесса рассмотрены в работе [11]. Исходя из экспериментальных фактов, учитывающих взаимное расположение групп адатомов и вакансионных дефектов под ними, можно однозначно утверждать, что в условиях подпорогового облучения, когда образование точечных дефектов за счет прямых столкновений невозможно, процесс рождения собственных междоузельных атомов (МУА) может реализоваться другим путем.

Анализ показывает, что этот процесс связан с присутствием в решетке большого количества гелия, внедренного при облучении. Так как бомбардировка осуществляется низкоэнергетичными ионами, имеющими небольшие пробеги, гелий оказывается локализованным в узком приповерхностном слое, где его концентрация при данных дозах облучения могла достигать десятков процентов. Отметим, что в условиях низкой термической подвижности гелия при 78 К большая локальная концентрация внедренных атомов — это прямой путь к образованию гелиевых кластеров по механизму самозахвата [12]. Появлению кластеров также способствует и динамический способ введения гелия в решетку, при котором для каждого нового налетающего иона всегда существует возможность оказаться в конце пробега в позиции, близкой к ранее внедренным атомам гелия. Расчеты проективных пробегов гелия с учетом распределения по энергиям показывают, что максимальная концентрация внедренных атомов гелия достигается на расстоянии 1.5–2 нм от поверхности, что соответствует 8 атомным слоям (110). Увеличение количества гелиевых атомов в кластере может привести к смещению какого-либо из атомов решетки из узловой позиции. Возникшая конфигурация представляет собой комплекс, состоящий из вакансии, заполненной несколькими атомами гелия, и связанного с ней междоузельного атома.

Вытеснение решеточных атомов гелием и рождение междоузельного атома в процессе эволюции гелиевых комплексов уже рассматривалось ранее [13] и получило название „мутации ловушек“. Этот подход требовал изначального существования в кристалле вакансий, заполненных хотя бы одним атомом гелия. Отметим, что в используемых образцах в исходном состоянии отсутствовали как дислокации, так и вакансии. Однако факт образования МУА в данном случае не вызывает сомнений. Это является экспериментальным подтверждением резуль-

татов, полученных методом молекулярной динамики [8], в которых показана возможность образования междоузельных атомов гелиевыми комплексами в совершенной (бездефектной) решетке, где процесс рождения и выхода МУА из объема индуцируется падающим пучком. В отличие от этого в нашем эксперименте определяющее влияние на развитие процессов рождения и выхода МУА из объема оказывает фактор близости к свободной поверхности.

Как известно, на любой тип дефекта, располагающегося вблизи поверхности, действует сила, стремящаяся вывести его из объема — сила зеркального изображения. Действие силы возрастает по мере приближения дефекта к поверхности.

Отметим, что рождение подвижного МУА возможно только после диссоциации сложного комплекса, возникшего в результате вытеснения. Поэтому важным аспектом действия сил зеркального изображения является их способность обеспечивать открепление МУА от гелий-вакансионных образований. Это происходит на определенном расстоянии от поверхности в зависимости от конкретно складывающейся ситуации. Испарение образца, в котором уже при облучении образовались комплексы с закрепленными на них МУА, лишь уменьшает расстояние от комплекса до поверхности, провоцируя тем самым процесс диссоциации. Аналогичным образом силы зеркального изображения могут стимулировать развитие процессов вытеснения решеточных атомов на глубине, где они еще не прошли. Учитывая, что силы изображения возрастают при приближении к поверхности, можно сделать вывод о существовании их влияния на число гелиевых атомов, способных обеспечить процесс вытеснения. Т.е. в зависимости от того, на какой глубине этот процесс реализуется, число гелиевых атомов, вошедших в одну вакансию, может уменьшаться при приближении к поверхности.

Существование временной задержки между моментами испарения и выхода МУА на поверхность указывает на термоактивированный характер их открепления от комплексов. Сам же процесс миграции междоузельных атомов в сторону поверхности происходит в форме кроудиона и является безактивационным, так как осуществляется в пределах области влияния сил изображения. По оценкам, полученным из других экспериментов, эта область составляет не менее 2 nm. В результате удаления слоя, содержащего внедренные атомы гелия, выход МУА из объема не наблюдался.

Таким образом, при низкоэнергетичном облучении, когда образование точечных дефектов путем прямых столкновений невозможно, образование собственных МУА путем вытеснения решеточных атомов из их узловых позиций атомами гелия происходит в пределах действия сил зеркального изображения. При этом в приповерхностной области возникает слой, характеризующийся наличием обедненных зон, состоящих из гелий-вакансионных комплексов. Наряду с первично смещенными поверхностными атомами выход из объема МУА оказывает дополнительное влияние на радиационно-индуцированную эрозию поверхности.

Авторы выражают благодарность проф. И.М. Михайловскому за полезные обсуждения и постоянное внимание к работе.

Список литературы

- [1] *Голубев О.Л.* // Письма в ЖТФ. 2009. Т. 35. В. 12. С. 18–24.
- [2] *Бернацкий Д.П., Павлов В.Г.* // Письма в ЖТФ. 2011. Т. 37. В. 24. С. 35–41.
- [3] *Bormashov V.S., Baturin A.S., Nikolskiy K.N., Tchesov R.G., Sheshin E.P.* // Surface and Interface Analysis. 2007. V. 39. Iss. 2, 3. P. 155–158.
- [4] *Walls J.M., Boothby R.M., Southworth H.N.* // Surf. Sci. 1976. V. 61. P. 419–434.
- [5] *Дранова Ж.И., Михайловский И.М.* // ФТТ. 1971. Т. 13. В. 2. С. 553–557.
- [6] *Cavaille J.V., Drechsler M.* // Surf. Sci. 1978. V. 75. P. 342–354.
- [7] *Redinger A., Hansen H., Linke U., Rosandi Y., Urbassek H.M., Michely T.* // Phys. Rev. Lett. 2006. V. 96. P. 106 103 (1–4).
- [8] *Henrikson K.O.E., Norlund K., Keinonen J.* // Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B. 2006. V. 244. P. 377–391.
- [9] *Ивченко В.А., Сюткин Н.Н., Кузнецова Л.Ю.* // Письма в ЖТФ. 2000. Т. 26. В. 13. С. 5–10.
- [10] *Березняк П.А., Слёзов В.В.* // Радиотехника и электроника. 1972. Т. 17. В. 2. С. 354–358.
- [11] *Wilson W.D., Bisson C.L., Baskes M.I.* // Phys. Rev. B. 1981. V. 24. P. 5616–5624.
- [12] *Evans J.H., van Veen A., Caspers L.M.* // Nature. 1981. V. 291. P. 310–312.
- [13] *De Hosson J.Th.M., Caspers L., Van Veen A.* // Radiation Effects. 1983. V. 78. P. 25–36.