

05;10;12

©1994 г.

ИССЛЕДОВАНИЕ МЕХАНИЗМОВ ИНТЕНСИВНОГО ПЕРЕНОСА АТОМОВ В ВЕЩЕСТВЕ, ОБЛУЧАЕМОМ МОЩНЫМИ НАНОСЕКУНДНЫМИ ПУЧКАМИ ЗАРЯЖЕННЫХ ЧАСТИЦ

В.П.Кривобоков, О.В.Пащенко, Г.А.Сапульская

В экспериментах по перемешиванию тонких металлических пленок мощными наносекундными пучками ионов зафиксированы эффективные коэффициенты диффузии на уровне $10^{-2} - 10^{-4}$ см²/с. Для объяснения столь высокой подвижности атомов проведено компьютерное моделирование диффузионных и термодиффузионных процессов в расплавленном поверхностном слое образца, перемешивания материалов пленки и подложки в гидродинамическом режиме, рассмотрена роль сегрегации примеси в движущемся фронте затвердевания.

Достигнутые за последнее время успехи в области сооружения мощных ускорительных пучков заряженных частиц наносекундной длительности позволяют надеяться на успешное использование этих машин в промышленных технологиях радиационной обработки материалов. Характер воздействия мощных наносекундных излучений на твердое тело — генерация мощных неравновесных полей температур и динамических механических напряжений, сопровождаемых фазовыми переходами и эрозией вещества, интенсивная миграция атомов делает их уникальными с точки зрения модификации поверхностных свойств материалов. Однако практическое их применение сдерживается недостаточным знанием лежащих в основе этих явлений фундаментальных вопросов диссипации энергии мощных импульсных излучений в веществе и механизмов массопереноса, причем если в излучении первых достигнут некоторый процесс, то уровень понимания физики процессов переноса вещества значительно ниже. Нет ясности даже в том, какие именно механизмы ответственные за интенсивную миграцию атомов в конденсированной фазе.

Если проведены эксперименты по облучению тонкопленочных металлических образцов мощным пучком ионов углерода с энергией $E_0 = 0.5$ МэВ и длительностью импульса на полувысоте $\tau = 200$ нс [1,2]. Концентрационные профили снимались методом масс-спектрометрии вторичных ионов. Резкое падение профиля концентрации материала пленки в необлученном образце (рис. 1, кривая 1) свидетельствует о хорошем качестве подготовки образцов и проведения анализа. Для

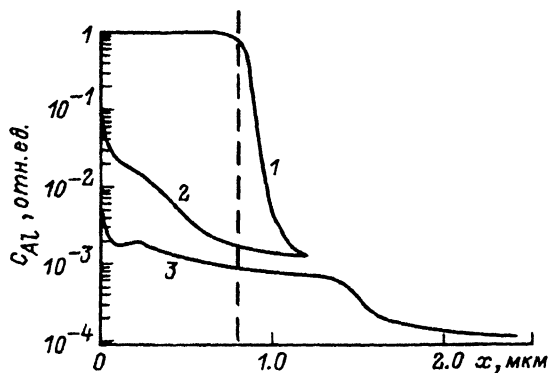
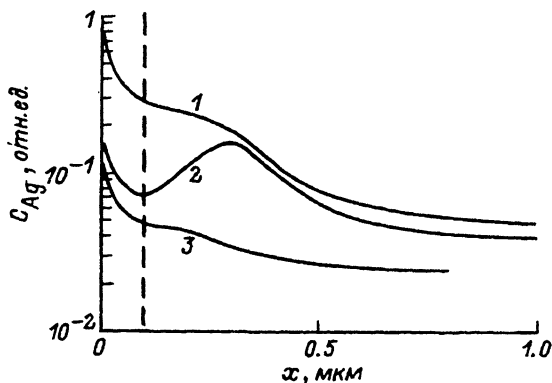


Рис. 1. Снятые методом ВИМС концентрационные профили Al в Nb.

1 — необлученный образец 0.8 мкм Al/Nb, 2 — после облучения пучком ионов углерода с плотностью тока 150 А/см², 3 — после 5 импульсов облучения с плотностью тока 120 А/см². Штриховая линия — исходная толщина пленки.

Рис. 2. Снятые методом ВИМС концентрационные профили Ag в Si после облучения пленки толщиной 0.1 мкм (показано штриховой линией) пучком ионов углерода с плотностью тока. 1 — 80, 2 — 80 (импульсов), 3 — 170 А/см².



облученных образцов зафиксирована значительная глубина проникновения атомов пленки в подложку (рис. 1, 2). Приняв за длительность диффузионных процессов время существования на поверхности образцов жидкой фазы, рассчитанное в соответствии с [3], мы определили эффективные коэффициенты диффузии, которые оказались равны $\sim 10^{-2} - 10^{-4}$ см²/с, что на несколько порядков превышает значения коэффициентов диффузии в жидких металлах. Столь интенсивный перенос не может быть объяснен и баллистическими процессами в силу малости ($\leq 10^{14}$ ионов/см²) флюэнса импульсного пучка.

Эффект высокоинтенсивного массопереноса при мощном импульсном ионном облучении был зафиксирован и другими авторами (например, в [4]). Он наблюдался также при импульсном электронном [5,6] и лазерном воздействиях.

Объяснение этого результата является принципиально важным моментом в изучении механизмов миграции атомов в конденсированной фазе.

Импульсное ионное воздействие порождает в образце мощные неравновесные поля температур и давлений, градиенты которых в соответствии с нашими расчетами достигают 10^9 К/м и 10^{14} Па/м. В этих условиях могут стать значительными обычно пренебрегаемые термо-бародиффузионные потоки

$$j_T = -ND \frac{k_T}{T} \nabla T, \quad j_p = -ND \frac{k_p}{P} \nabla P. \quad (1)$$

Рис. 3. Диффузионный j_c/N (1) и термодиффузионный j_T/N (2) потоки вещества при облучении системы (0.1 мкм Ag/Cu) ионами C^+ с энергией 0.5 МэВ и плотностью тока 80 A/cm^2 в момент времени $t = 80 \text{ нс}$.

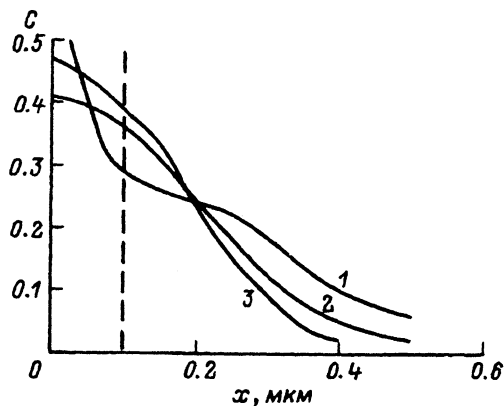
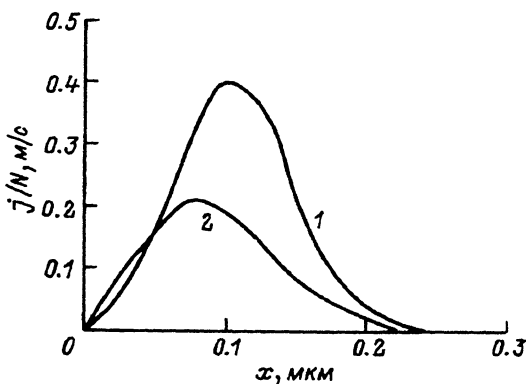


Рис. 4. Профили концентрации Ag в Cu на момент полного затвердевания ($t = 590 \text{ нс}$).

1 — эксперимент, 2 — расчет с $Q^* = 5 \text{ эВ}$, 3 — расчет без учета термодиффузионного потока.

Здесь N — ядерная плотность вещества, D — коэффициент диффузии, T — температура, P — давление, k_T и k_p — соответственно термо- и бародиффузионные отношения. Теории термо- и бародиффузии [7,8, с. 140] дают для k_T и k_p следующие приближенные выражения:

$$k_T \approx \frac{\Omega^* C}{kT}; \quad k_p \approx \frac{\Delta V}{kT} PC, \quad (2)$$

где Ω^* — теплота переноса диффузанта, C — его концентрация, ΔV — разность атомных объемов диффузанта и матрицы, k — постоянная Больцмана.

Оценки показывают, что в условиях облучения наносекундным ионным пучком потоки $j_c = -ND\nabla C$, j_T и j_p соотносятся как $1 : 1 : 10^{-2}$.

В связи с этим нами было проведено более детальное изучение диффузии под действием градиента температуры, для чего термодиффузионное уравнение

$$\frac{\partial C}{\partial t} = \nabla \left[D \left(\nabla C + \frac{k_T}{T} \nabla T \right) \right] \quad (3)$$

решалось совместно с задачей Стефана. Расчеты проводились для условий экспериментов до момента полного затвердевания образца.

Результаты для одного из режимов облучения приведены на рис. 3, 4. Видно, что учет термодиффузии дает существенную добавку в общий диффузионный поток и позволяет сблизить расчетный и экспериментальный профили. Однако полного их совпадения не удалось достичь, зарегистрированный в экспериментах перенос был более интенсивным.

Если содержащаяся в расплаве примесь имеет разные пределы растворимости в твердой и жидкой фазе, то при движении фронта затвердевания в нем будет происходить ее сегрегация [7-10]. Результирующий профиль концентрации примеси определяется как коэффициентом сегрегации, равным отношению пределов растворимости, так и соотношением между интенсивностью перемешивания расплава (например, в результате диффузии) и скоростью движения фронта. Анализ кинетики этого процесса применительно к воздействию мощных импульсных пучков заряженных частиц показал, что сегрегация может привести к появлению резких пиков или провалов концентрационного профиля (в зависимости от величины коэффициента сегрегации) в точке максимального проплавления и у поверхности. Толщина этих пиков $\delta = D/V_f$, где V_f — скорость фронта рекристаллизации, составляет (при $D \approx 10^{-3}$ см²/с в соответствии с результатами эксперимента) ~ 0.1 мкм для электронного облучения и ~ 0.01 мкм для ионного. На остальной части концентрационного профиля влияние сегрегации незначительно. Сделанный вывод подтверждается наличием резких максимумов у поверхности на экспериментально полученных концентрационных профилях.

Таким образом, эффект сегрегации может несколько изменить форму концентрационного профиля примеси, но не способен (по крайней мере при однократном облучении) объяснить проникновение примеси вглубь.

Еще одной причиной усиления миграции атомов под действием мощных импульсных пучков заряженных частиц может быть перемешивание вещества в расплавленном поверхностном слое в гидродинамическом режиме. Причиной такого перемешивания может стать тонкая структура мощности энерговыделения вдоль поверхности образца в результате либо филаментации пучка, на существование которой указывается в ряде публикаций [11,12], либо преимущественного протекания тока по пикам шероховатости образца. В обоих случаях характерный размер неоднородностей энерговыделения d_J составляет десятки микрометров. На небольшом участке поверхности можно пренебречь макронеднородностью плотности тока пучка и представить распределение плотности тока вдоль поверхности образца в виде периодической функции, например

$$J(y, t) = J(t) \left(1 + \cos \left(\frac{2\pi y}{d_J} \right) \right). \quad (4)$$

где $J(t)$ — средняя по поверхности плотность тока.

Для исследования этого процесса нами была численно решена система уравнений сплошной среды для случая облучения железной мишени мощным электронным пучком с $E_0 = 0.9$ МэВ, J в максимуме импульса 10 кА/см², $\tau = 70$ нс (на грани испарения). Была разработана схема решения уравнений в эйлеровом виде, позволяющая

Рис. 5. Смещение маркеров на глубине $x_0 = 10$ мкм в железном образце толщиной 1 мм, облучаемом электронами с $E = 0.9$ МэВ, $J = 10$ кА/см², в различные моменты времени.

Штриховая линия — распределение мощности энерговыделения по поверхности образца ($\sigma_J = 30$ мкм, $d_J = 100$ мкм); 1 — 40, 2 — 140, 3 — 200 нс.

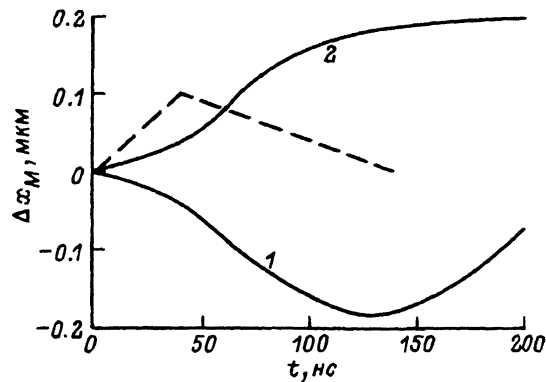
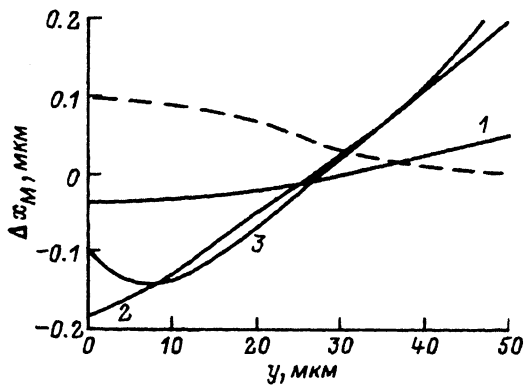


Рис. 6. Эволюция смещений маркеров для того же режима облучения.

Штриховая линия — форма импульса тока электронов; 1 — $y_m = 0$, 2 — 50 мкм.

отслеживать движущуюся поверхность конденсированной фазы. Использовались уравнения состояния вещества [13]. В приповерхностный слой образца были введены точечные маркеры, имитирующие частицы пленки. Отслеживались рассчитываемые через массовые единицы (для устранения эффектов изменения плотности) смещения маркеров по глубине

$$\Delta x_m(t) = \frac{1}{\rho_0} \int_{x_s(y_m, t)}^{x_m(t)} \rho(x, y_m, t) dx - x_m(0), \quad (5)$$

где x_m, y_m — координаты маркера; x_s — координаты поверхности; ρ — плотность; ρ_0 — исходная плотность образца.

Были получены следующие результаты. В образце развивались давления до 10^9 Па. Скорости вещества в направлении x достигали $10^2 - 10^3$ м/с, в направлении y 0.1–1 м/с. Было обнаружено, что в приповерхностных слоях толщиной в десятки микрометров величина смещений маркеров пропорциональна глубине их залегания x_m и локальному градиенту плотности тока $dJ/dy \sim d_J^{-1}$. На рис. 5, 6 приведена эволюция смещения маркеров, расположенных на исходной глубине $x_m(0) = 10$ мкм для случая $d_J = 100$ мкм. Видно, что к моменту $t = 200$ нс смещения составили десятые доли микрометров. Несмотря

на то что смещение маркера с $y_m = 0$ при $t > 150$ нс имеет тенденцию к уменьшению из-за разгрузки энергетически насыщенной области вблизи поверхности, движение маркеров не является простым колебательным процессом. Анализ поля скоростей в зоне вычислений $0 \leq x \leq 1$ мм, $0 \leq y \leq d_J/2$ показал наличие ненулевого момента импульса. Естественно предположить, что данное вихревое движение за время существования на поверхности образца жидкой фазы и затухания волн давления (единицы мс) способно привести к существенному перемешиванию поверхностных слоев. К сожалению, довести процесс моделирования до этого момента не позволяют неустойчивости вычислительного процесса, присущие эйлеровым схемам решения уравнений сплошной среды. Применение же лагранжевых схем для расчета перемешивания жидкости неприемлемо.

Таким образом, среди механизмов интенсификации миграции атомов при облучении твердого тела мощными наносекундными пучками заряженных частиц важную роль играют диффузия и термодиффузия в расплавленном поверхностном слое образца, а также перемешивание этого слоя в гидродинамическом режиме. Некоторое влияние на форму концентрационного профиля примеси оказывает явление сегрегации компонентов расплава при его направленной кристаллизации. Представляется также вероятным и требует дальнейших исследований вопрос об изменении энергии активации диффузии в деформированной ударной волной кристаллической решетке материала. Следует отметить, что динамика перечисленных процессов определяется не столько типом частиц излучения, сколько создаваемым ими пространственно-временным распределением мощности энерговыделения в твердом теле.

Список литературы

- [1] Валеев Т.И., Кривобоков В.П., Пащенко О.В. // Тез. докл. Всесоюз. конф. "Ионно-лучевая модификация материалов". Черногловка, 1987. С. 74.
- [2] Krivobokov V.P., Paschenko O.V. // II Intern. Conf. on Electron Beam Technologies-EVT-88. Varna, 1988. P. 796-801.
- [3] Асаинов О.Х., Кривобоков В.П., Лизачев А.Е., Сапульская Г.А. // Физика и химия обраб. матер. 1987. № 2. С. 53-59.
- [4] Pogrebnyak A.D. // Phys. Stat. Sol. 1990. Vol. 117 a. N 17. P. 17-51.
- [5] Barbier D., Ghemisky G., Grob J.J. et al. // J. de Phys. 1983. Vol. 44. N 10. P. 209-214.
- [6] Bataglin G., Carnera A., Donna dalle Rose L.F. et al. // Thin Sol. Films. 1986. Vol. 145. P. 147-160.
- [7] Фогельсон Р.Л. Деп. в ВИНТИ. №. 1548-83. Воронеж, 1983. 29 с.
- [8] Бокштейн Б.С. Диффузия в металлах. М.: Металлургия, 1978. 248 с.
- [9] Пфанн В.Дж. Зонная плавка. М.: Мир, 1970. 366 с.
- [10] Зам П.Р., Штурм И.С. // Космическое материаловедение / Под ред. Б. Фойербаха, Г. Хамахеера, Р. Наумана. М.: Мир, 1989. С. 143-161.
- [11] Виденко А.Н., Исаков И.Ф., Лапскер И.А. и др. // Письма в ЖТФ. 1987. Т. 13. Вып. 9. С. 526-531.
- [12] Гордеев А.В., Рудаков Л.И. // ЖЭТФ. 1982. Т. 83. Вып. 6(12). С. 2048-2055.
- [13] Жуков А.В. // ЖПМиПФ. 1986. № 5. С. 112-114.

Научно-исследовательский институт ядерной физики
при Томском политехническом институте

Поступило в Редакцию
10 июня 1993 г.