

ОБЪЕДИНЕННЫЙ ИНСТИТУТ ЯДЕРНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ

14-2004-10

На правах рукописи
УДК 538.97

ЕФИМОВ
Антон Евгеньевич

**НАНОРАЗМЕРНЫЕ ДЕФЕКТЫ
НА ПОВЕРХНОСТИ МОНОКРИСТАЛЛОВ Al_2O_3 И MgO ,
ВЫЗВАННЫЕ ТЯЖЕЛЫМИ ИОНАМИ ВЫСОКИХ ЭНЕРГИЙ**

Специальность: 01.04.07 — физика конденсированного
состояния

Автореферат диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Дубна 2004

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

НАУЧНЫЙ РУКОВОДИТЕЛЬ

кандидат физико-математических наук

Скуратов В.А.

ОФИЦИАЛЬНЫЕ ОППОНЕНТЫ:

доктор физико-математических наук
профессор

Рязанов А.И.

доктор физико-математических наук

Осипов В.А.

ВЕДУЩАЯ ОРГАНИЗАЦИЯ: Федеральное государственное унитарное предприятие
«Научно-исследовательский институт физических
проблем им. Ф. В. Лукина»

Защита состоится « ____ » _____ в ____ часов

на заседании диссертационного совета D.720.001.06 при

Объединенном институте ядерных исследований, по адресу:

141980, г. Дубна, Объединенный институт ядерных исследований.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке ОИЯИ.

Автореферат разослан « ____ » _____ 2004г.

Ученый секретарь
диссертационного совета
кандидат физико-математических наук



Попеко А.Г.

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность проблемы. Последние достижения техники атомно-силовой микроскопии (АСМ) позволили выделить в радиационной физике твердого тела новое направление, связанное с исследованием структурных повреждений поверхности, вызываемых воздействием единичных ионов высоких энергий ($E \geq 1$ МэВ/а.е.м.), и их связи с радиационными повреждениями в объеме материала. Эти работы представляют значительный интерес, поскольку характерный для подобного облучения высокий уровень удельных ионизационных потерь энергии, достигающий нескольких десятков кэВ/нм, может служить источником специфических структурных нарушений, не наблюдаемых при бомбардировке другими ядерными частицами. К таким эффектам относятся, прежде всего, структурно-фазовые превращения и формирование латентных треков в объеме, и образование наноразмерных дефектов на поверхности мишени. Несмотря на постоянно растущее число экспериментальных и теоретических работ, посвященных данной тематике, в настоящее время нет единого представления о микроскопических механизмах дефектообразования и эволюции дефектной структуры в твердых телах при такой высокой плотности ионизации.

К числу материалов, в которых эффекты ионизации практически не изучены, относятся монокристаллы и керамики оксидов, карбидов и нитридов, такие как, MgO , Al_2O_3 , $MgAl_2O_4$, SiC , TiC , AlN , Si_3N_4 , являющихся одними из наиболее радиационно-стойких диэлектриков. Исследования их структурного отклика на воздействие высокоэнергетического ионного облучения имеет большое практическое значение для моделирования эффектов, вызываемых осколками деления, т.е. атомами с массой от 80 до 155 а.е.м. и энергией около ста МэВ, в инертных разбавителях (матрицах) композитного ядерного топлива. Необходимо отметить, что процессы, происходящие в треках осколков деления, не могут быть смоделированы с использованием достаточно широко доступных пучков тяжелых ионов с энергиями в несколько МэВ, поскольку для получения корректных результатов необходимо учитывать эффекты высокой плотности ионизации. Это возможно только при использовании высокоэнергетического ионного облучения в широком интервале масс и энергий, позволяющих варьировать различные уровни ионизационных и ядерных потерь энергии для моделирования воздействия продуктов деления.

Создание и исследование свойств наноразмерных структур на поверхности на поверхности твердых тел с помощью тяжелых ионов высоких энергий представляет интерес также для решения задач нанотехнологии. Уменьшение размеров микронных элементов требует разработки новых методов формирования элементов с характерными размерами в десятки нанометров, и управляемое создание структурных радиационных дефек-

тов является одним из перспективных направлений в данной области. Следует заметить, что на момент начала исследований, результаты которых представлены в настоящей работе, существовало весьма ограниченное число работ по исследованиям наноразмерных радиационных дефектов, создаваемых на поверхности высокоэнергетическими ионами. Для радиационно-стойких диэлектриков отдельные эксперименты проводились только с использованием пучков ионных кластеров.

Целью настоящей работы являлось экспериментальное исследование структурных нарушений поверхности монокристаллов Al_2O_3 и MgO , вызванных бомбардировкой тяжелыми ионами с энергиями в диапазоне $0,6\div 3,5$ МэВ/а.е.м..

Научная новизна. В ходе выполнения диссертационной работы были впервые рассмотрены и решены следующие задачи:

Впервые методами АСМ на поверхности монокристаллов Al_2O_3 и MgO исследованы закономерности формирования наноразмерных структурных дефектов, индуцированных высокоэнергетичными тяжелыми ионами, и определены пороговые значения плотности ионизации, начиная с которых наблюдаются изменения топографии поверхности данных кристаллов, получены данные об эволюции рельефа поверхности с изменением ионного флюенса и геометрических параметрах дефектов при различных углах падения ионов.

Установлено, что образование наноразмерных дефектов на поверхности происходит при плотности ионизации меньше порога образования латентных аморфных треков в объеме материала и не связано с процессами структурно-фазовых превращений (перехода кристаллической фазы в аморфную) в ионных треках.

Практическая значимость работы. Полученные в работе результаты могут быть использованы при решении задач физики радиационных повреждений, связанных с моделированием эффектов, вызываемых осколками деления в инертных разбавителях композитного ядерного топлива и других диэлектрических материалах, являющихся элементами конструкций ядерно-энергетических установок, а также при разработке технологий высокоэнергетической ионной имплантации.

Основные положения, выносимые на защиту:

1. Результаты исследования изменения профиля поверхности монокристаллов Al_2O_3 и MgO , вызванной облучением ионами Bi и Kr с энергией $0,6\div 3,5$ МэВ/а.е.м.
2. Установленные закономерности формирования наноразмерных радиационных дефектов на поверхности Al_2O_3 и MgO в зависимости от уровня удельных ионизационных потерь энергии ионов, ионного флюенса и угла падения ионного пучка.

3. Результаты исследований связи структурных нарушений, вызванных облучением высокоэнергетическими ионами Bi в объеме и на поверхности монокристаллов Al_2O_3 .

Апробация работы. Основные результаты и отдельные положения диссертации докладывались на международной конференции "Nuclear Tracks in Solids", Portoroz, Slovenia, August 28 - September 1, 2000, «Scanning Probe Microscopy», международном совещании "Scanning Probe Microscopy -2001", Nizhny Novgorod, February 26 -March 1, 2001, XI международной конференции «Scanning Tunneling Microscopy», 2001, Toronto, Canada, международном совещании "EuNITT Workshop on Ion Track Technology", 25-26 February, 2002 Caen, France, XIV международном совещании «Inelastic Ion-Surface Collisions», Ameland, Netherlands, 13th International Conference on Surface Modification of Materials by Ion Beams, September 21 -26, 2003, San Antonio, Texas, USA, V международной конференции "Взаимодействие излучений с твердым телом", Минск, Беларусь, 6-9 октября 2003, семинарах Центра прикладной физики Лаборатории ядерных реакций ОИЯИ.

Публикации. Основные результаты диссертации изложены в 4 статьях в реферируемых научных журналах, 1 докладе и 2 тезисах в сборниках материалов совещаний и конференций.

Структура диссертации. Диссертация состоит из введения, трех глав и заключения. Объем диссертации – 107 страниц машинописного текста, включая 30 рисунков, 3 таблиц и библиографический список из 98 наименований.

Содержание работы

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

Первая глава диссертации носит обзорный характер. В первой части представлены основные характеристики первичных радиационных повреждений, вызываемых высокоэнергетическими тяжелыми ионами в твердых телах и методы их расчета. Далее приводятся и обсуждаются известные из литературы данные о структурных эффектах ионизации в диэлектриках, и механизмах, привлекаемых для их описания. Как правило, анализ экспериментальных результатов проводится в рамках двух моделей - кулоновского взрыва и термического пика. В большинстве работ при анализе экспериментальных результатов используется основное предположение модели термического пика – образование разупорядоченных областей вдоль траектории иона происходит за счет локального повышения температуры до уровня, превышающего температуру плавления и последующего быстро-

го остывания. Такой подход дает возможность получить для значительного числа комбинаций ион плюс мишень близкие к наблюдаемым значения поперечных размеров латентных треков и пороговых уровней плотности ионизации, необходимых для их формирования. В то же время, эта модель не позволяет объяснить многие экспериментальные данные и единый микроскопический механизм образования дефектов за счет электронного торможения тяжелых ионов еще не создан.

В третьей части главы рассматриваются известные из литературы данные по нарушениям поверхности диэлектрических кристаллов тяжелыми заряженными частицами. В зависимости от свойств материала мишени и параметров облучения на поверхности регистрируются наноразмерные дефекты двух видов – кратеры и хиллоки (выступы), образование которых связывается с разными механизмами. Считается, что появление кратеров является результатом распыления материала и характерно, главным образом, для облучения низкоэнергетическими ионами. К числу наиболее вероятных процессов, ответственных за образование хиллоков, относят структурно-фазовые превращения в области ионного трека и пластическую деформацию поверхности под действием ударных волн, генерируемых единичными ионами. Одним из факторов, влияющих на изменение топографии поверхности диэлектриков при ионной бомбардировке, является также заряд ионов. В работах по распылению SiO_2 , LiF , Al_2O_3 , MgO низкоэнергетическими многозарядными ионами установлено, что коэффициент распыления увеличивается с ростом заряда ионов [1]. Особенно наглядно данная зависимость проявляется на кристаллах, в которых возможна автолокализация электронных возбуждений, т.е. существование автолокализованных электронов и дырок. В то же время отмечается, что этот эффект проявляется при достаточно высоких ионных флюенсах и не связан с воздействием единичных ионов.

Согласно имеющимся данным, дефекты в форме хиллоков на поверхности радиационно-стойких окислов (Al_2O_3 , TiO_2) наблюдались только в условиях сверхвысокого уровня ионизационных потерь энергии, $46 \div 70$ кэВ/нм, при облучении фуллеренами с энергиями несколько десятков МэВ. На основе сравнения данных АСМ и просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ) была установлена корреляция между изменениями поверхности и латентными треками в объеме монокристаллов сапфира [2]. Высказано предположение, что появление хиллоков является следствием фазового перехода кристаллическая – аморфная фаза в области латентного трека. Так как плотность аморфной фазы на несколько процентов меньше кристаллической, это приводит к увеличению объема и выдавливанию вещества на поверхность как результат релаксации механических напряжений. Необходимо отметить, что данных по структурным нарушениям поверхности кристаллов тугоплавких окислов кристаллов высокоэнергетическими моноатомными частицами в литера-

туре нет. В заключение к первой главе формулируется постановка задачи диссертационной работы.

Во второй главе приведена методика облучения образцов на ускорителе тяжелых ионов, дано краткое описание метода АСМ и режимов работы атомно-силового микроскопа при исследовании поверхности, рассмотрены основные факторы, определяющие пространственное разрешение по вертикали и горизонтали и источники искажений. В третьей части главы обсуждается предложенный автором метод коррекции АСМ изображений с учетом влияния зондовых артефактов. В заключительной части дана характеристика объектов исследований.

Облучение высокоэнергетическими тяжелыми ионами проводилось на канале для прикладных исследований 10-А циклотрона У-400 ЛЯР ОИЯИ. Монокристаллы Al_2O_3 , MgO , $MgAl_2O_4$ и SiC в виде пластинок толщиной $0,3 \div 0,5$ мм крепились с помощью тепло- и электропроводящего углеродного клея к мишенному держателю, охлаждаемому водой. Для исключения перегрева облучаемых мишеней плотность потока ионов составляла $1 \div 2 \times 10^8$ $см^{-2} \cdot с^{-1}$. При таком режиме облучения тепловая мощность, вносимая ионным пучком, не превышала десятых долей Вт. Флюенс ионов составлял $1 \div 2 \times 10^{10}$ $см^{-2}$. Часть образцов Al_2O_3 была облучена под различными углами падения ионного пучка – 15, 30, 45, 60 и 75 градусов, а также при температуре жидкого азота. Для исследования поврежденной поверхности кристаллов с существующей дефектной структурой, образцы Al_2O_3 предварительно облучались ионами гелия с энергией 20 кэВ до флюенсов $10^{14} \div 10^{16}$ $см^{-2}$ на стенде ЭЦР-источника ЛЯР ОИЯИ и установке LIMBE (low-energy multicharged-ion beam) в GANIL (Каен, Франция).

Отмечается, что условия облучения на циклотроне и У-400 отвечают специальным требованиям, предъявляемые к экспериментам на ускорителях заряженных частиц, в частности, однородности распределения пучка ионов по площади образца. На циклотроне У-400 однородное распределение достигалось путем использования систем магнитного и электростатического сканирования пучка (частота сканирования 120 и 2-8кГц) в вертикальном и горизонтальном направлениях, соответственно.

Для изменения энергии ионов использовались поглощающие экраны из алюминиевой фольги различной толщины, закрывавшие различные части одного и того же образца, что позволяло наиболее корректно сравнивать полученные результаты. Разброс энергий ионов, прошедших через алюминиевые экраны, не превышал ± 4 МэВ для максимальной толщины поглотителя 25,5 мкм. Тип и энергии использовавшихся ионов представлены в таблице 1. Указанные энергии ионов после прохождения экранов, а также величины иони-

зационных и ядерных потерь энергии в приповерхностном слое мишеней рассчитаны с помощью программы SRIM2000.

Изучение поверхности образцов проводилось с помощью сканирующего зондового микроскопа Solver-P47 разработанного компанией НТ-МДТ на базе НИИФП им. Лукина (Зеленоград). Измерения проводились в резонансном режиме (режиме «таппинга»), при котором силы, действующие между зондом и образцом минимальны, что обеспечивает сохранность поверхностных структур в ходе измерений. Для измерений использовались кремниевые зонды (кантилеверы) с резонансной частотой ~ 300 кГц, жесткостью ~ 40 Н/м и радиусом кривизны острия < 10 нм. В результате измерений были получены трехмерные изображения топографии поверхности образцов. Для учета искажений, вносимых в АСМ-изображения зондом, и корректной оценки размеров наблюдаемых дефектов было разработано специальное программное обеспечение (программа обработки изображений DECONVO).

Электронно-микроскопические измерения были выполнены на автоэмиссионном электронном микроскопе Hitachi HF-2000 в Ок-Риджской национальной лаборатории (США).

В экспериментах использовались образцы кристаллов MgO компаний “Crystal GmbH“, Берлин и “MTI Corporation“, США, образцы кристаллов MgAl₂O₄ компании “MTI Corporation“, США и образцы кристаллов сапфира компании “Сапфир-ЭЛМА“, Зеленоград, и Института кристаллографии Академии наук (ИКАН). Образцы карбида кремния представляли собой высокоомный эпитаксиальный слой политипа 4H-SiC толщиной 30 микрон, выращенный методом газотранспортной эпитаксии на коммерческой подложке компании “Cree”.

В третьей главе приведены результаты экспериментов по исследованию наноразмерных дефектов на поверхности образцов Al₂O₃ и MgO, вызванных высокоэнергетическими ионами криптона и висмута. В первой части главы 3 анализируется зависимость параметров наблюдаемых дефектов от плотности ионизации, температуры облучения и угла падения ионов. В результате АСМ-исследований обнаружено, что воздействие ионов Вi на поверхность монокристаллов Al₂O₃ и MgO сопровождается формированием наноразмерных дефектов в виде хиллоков конической формы. Плотность наблюдаемых хиллоков согласуется с флюенсом ионов в пределах экспериментальной ошибки ($\pm 10\%$) его определения. Это дает основание утверждать, что каждый дефект появляется в результате воздействия единичного иона. На образцах сапфира, облученного ионами Вi, хиллоки наблюдались при всех использовавшихся энергиях ионов вплоть до наименьшей – 128 МэВ, что соответствует плотности ионизации 25,4 кэВ/нм.

Таблица 1. Условия облучения образцов монокристаллов.

Тип и заряд ионов	$Вl^{+51}$	$Вl^{+51}$	$Вl^{+51}$	$Вl^{+32}$	$Вl^{+25}$	$Вl^{+17}$	$Кг^{+27}$	$Кг^{+27}$	$Кг^{+27}$	$Хе^{+41}$
Толщина поглотителя, мкм	0	0	8,5	17	25,5	0	0	0	0	0
Энергия ионов, МэВ	710	710	495	292	128	245	245	305	595	
$(dE/dx)_{ion}$, кэВ/нм	41	38,1	39	36	25,4	15,8	15,5	16,6	26	
$(dE/dx)_n$, кэВ/нм	0,08	0,1	0,12	0,35	0,7	0,035	0,031	0,03	0,04	
материал мишени	Al_2O_3	MgO	Al_2O_3	Al_2O_3	Al_2O_3	MgO	MgAl ₂ O ₄	Al_2O_3	Al_2O_3	Al_2O_3
угол падения ионов	0°, 30°, 45°, 60°, 75°	0°	0°	0°	0°	0°	0°	0°	0°	0°
температура облучения, К	300, 77	300	300	300	300	300	300	300	300	300
флюенс облучения, ион/см ²	2×10^{10} , 1×10^{11} , 5×10^{11} , 1×10^{12}	2×10^{10}	2×10^{10}	2×10^{10}	2×10^{10}	2×10^{10}	2×10^{10}	2×10^{10}	2×10^{10}	2×10^{10}

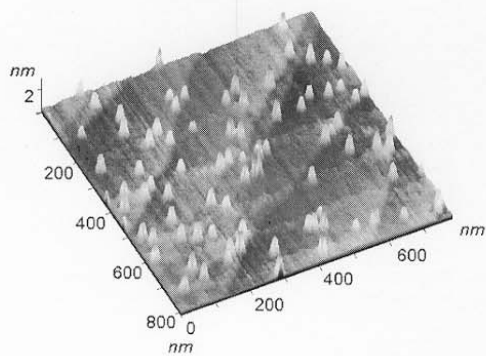
В то же время, облучение сапфира ионами Kг с энергией 245 МэВ и Хе с энергией 610 МэВ не приводит к образованию подобных дефектов. Заметное изменение топографии поверхности монокристаллов MgO детектируется после облучения ионами криптона. Радиационные дефекты на поверхности MgAl₂O₄ практически на пределе разрешения АСМ регистрировались при $(dE/dx)_{\text{ион}} = 15,5$ кэВ/нм. Изменений рельефа поверхности образцов SiC, которые можно было бы ассоциировать с воздействием высокоэнергетических ионов криптона или висмута в проведенных экспериментах не обнаружено.

Пороговый характер и зависимость геометрических параметров наблюдаемых повреждений от энергии ионов (см. рис. 1а, б, в) позволяют однозначно связать образование радиационных дефектов на поверхности монокристаллов сапфира с неупругими потерями энергии ионов висмута. Как следует из таблицы 1, плотность ионизации падает с уменьшением энергии ионов, в то время как удельные потери на упругое рассеяние возрастают. Таким образом, величину $(dE/dx)_{\text{ион}} = 25,4$ кэВ/нм можно рассматривать как верхнюю границу пороговой плотности ионизации, необходимой для возникновения дефектов. Аналогичное значение для кристаллов MgO, полученное по результатам облучения ионами Kг с энергией 245 МэВ, составляет 15,8 кэВ/нм.

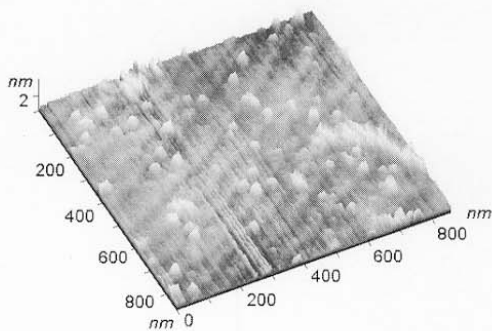
Поскольку вместе со снижением уровня ионизации уменьшается и средний заряд ионов, $\langle Z \rangle$, (см. таб. 1), при анализе возможных причин образования хиллоков во внимание должны приниматься и процессы, связанные с нейтрализацией заряда в приповерхностном слое мишени. В то же время, в проведенных экспериментах радиационные дефекты не были зарегистрированы после бомбардировки ионами Kг⁺²⁷ и Хе⁺⁴¹, имеющих больший заряд, чем ионы висмута с энергией 292 и 128 МэВ. Отсутствие хиллоков на поверхности сапфира, облученного ионами Хе ($(dE/dx)_{\text{ион}} = 26$ кэВ/нм) объясняется так называемым “эффектом скорости”, согласно которому одни и те же структурные нарушения, например, латентные треки, при одинаковых значениях $(dE/dx)_{\text{ион}}$ регистрируются для ионов, имеющих меньшую скорость, v_i . Следовательно, принимая во внимание возможную зависимость от $\langle Z \rangle$ и v_i , можно сделать вывод, что наблюдаемый эффект определяется, главным образом, потерями энергии ионов на ионизацию.

Зависимость параметров дефектов от уровня ионизационных потерь энергии подробно рассматривается на примере изменения распределения хиллоков по высоте. Обнаружено, что среднее значение высоты изменяется от $1,55 \pm 0,30$ нм до $0,75 \pm 0,28$ нм при снижении $(dE/dx)_{\text{ион}}$ от 41 кэВ/нм до 25,4 кэВ/нм (рис. 2). Средний диаметр хиллоков на поверхности сапфира, полученный для исходной энергии ионов висмута 710 МэВ, составляет на полувысоте $9,0 \pm 1,8$ нм.

a)



б)



в)

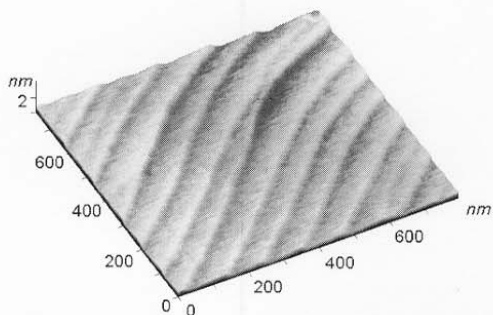


Рис. 1. АСМ-изображения поверхности сапфира, облученного ионами Вi при 300 К в зависимости от уровня ионизационных потерь энергии вблизи поверхности кристалла: (а) - 36 кэВ/нм, (б) - 25,4 кэВ/нм и необлученного (в). Флюенс ионов $2 \times 10^{10} \text{ см}^{-2}$.

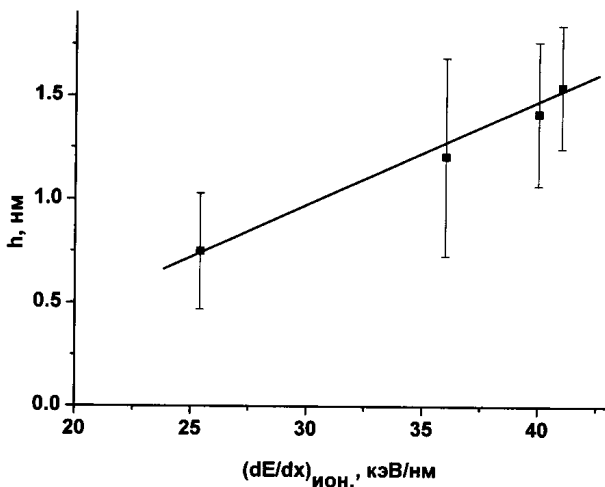


Рис. 2. Зависимость средней высоты хиллоков на поверхности монокристаллов Al_2O_3 по высоте от плотности ионизации.

Вариация других экспериментальных условий – ионного флюенса, температуры мишеней в процессе облучения, угла падения ионного пучка и степени разупорядочения кристаллической решетки в исходных образцах, позволила получить следующие данные:

1. Дефекты на поверхности начинают перекрываться при флюенсе $\sim 1 \times 10^{11} \text{ см}^{-2}$, причем высота перекрывающихся хиллоков возрастает примерно вдвое, как следует из топографических снимков и профилей сечения, приведенных на рис. 3а-е. При $1 \times 10^{12} \text{ см}^{-2}$ все хиллоки уже полностью перекрываются, образуя на поверхности сплошной разупорядоченный слой с повышенной нерегулярностью рельефа (рис. 3е).

2. Радиационные дефекты в виде конических хиллоков на поверхности монокристаллов Al_2O_3 , облученных ионами висмута с энергией 710 МэВ, регистрируются независимо от температуры мишеней в интервале $80 \div 300 \text{ К}$, т.е. в условиях, когда коэффициент теплопроводности изменяется от $\sim 1000 \text{ Вт/м К}$ до $\sim 30 \text{ Вт/м К}$. При этом средняя высота хиллоков составляет $2,53 \pm 0,63 \text{ нм}$ для $T_{обл.} = 80 \text{ К}$ по сравнению с $1,55 \pm 0,30 \text{ нм}$ для $T_{обл.} = 300 \text{ К}$.

3. Не обнаружены существенные различия геометрических параметров хиллоков, детектируемых на образцах сапфира последовательно облученных ионами гелия (17 кэВ) до

уровня повреждений $\sim 1+5 \times 10^{-2}$ смещений на атом и висмута (710 МэВ , $2 \times 10^{10} \text{ см}^{-2}$) по сравнению с неимплантированным материалом.

4. Зависимость формы хиллоков от угла падения ионов проявляется только при значительном отклонении от нормали к поверхности образца, более чем на 60 градусов. Эффект заключается в увеличении размера хиллока у основания вдоль направления движения иона, т.е. в изменении формы основания от окружности, при нормальном падении пучка, к эллипсу. По данным серии АСМ-изображений, средняя длина хиллоков у основания составляет $27,8 \pm 5 \text{ нм}$, ширина $17,6 \pm 5 \text{ нм}$, что дает отношение длины к ширине $1,6:1$. При этом форма хиллока становится несимметричной, затянутой к точке входа иона в мишень (рис. 4). В тоже время, высота хиллоков практически не изменяется. В пределах точности измерений наблюдается даже некоторое увеличение средней высоты по сравнению с перпендикулярным облучением.

Корреляция структурных нарушений, регистрируемых на поверхности и в объеме облучаемых кристаллов, обсуждается во второй части главы 3. Электронно-микроскопические исследования в планарной геометрии, проведенные на образце сапфира, облученного ионами Вi с энергией 710 МэВ до флюенса $7 \times 10^{12} \text{ см}^{-2}$, показали, что регистрируемые дефекты в объеме представляют собой разупорядоченные области диаметром порядка 4 нм . Микродифракционные изображения этой области свидетельствуют, что она сохраняет кристаллическую структуру исходного материала (рис. 5а, б). Следовательно, формирование наблюдаемых нами дефектов на поверхности не связано с переходом кристаллическая - аморфная фаза в области ионного трека. Другим важным результатом этих экспериментов, является наблюдение в приповерхностном слое монокристалла сапфира зерен размером около 200 нм , образование которых, является следствием релаксации механических напряжений вокруг отдельных ионных траекторий, поскольку при флюенсе $7 \times 10^{12} \text{ см}^{-2}$ разупорядоченные области еще не перекрываются (см. рис. 5а).

В заключительной части главы обсуждаются возможные механизмы формирования наноразмерных дефектов на поверхности монокристаллов Al_2O_3 и MgO с учетом полученных экспериментальных данных. Принимая во внимание, что следствием диссипации ионизационных потерь энергии является, прежде всего, локальный нагрев решетки, были сделаны оценки температуры в области траектории ионов висмута в сапфире в рамках известных теоретических моделей. Проведенные расчеты показывают, что температура в области, ограниченной радиусом 2 нм , что соответствует размеру разупорядоченной области по данным ПЭМ, превосходит температуру плавления и даже температуру испарения. Такой значительный нагрев даже в отсутствие фазового перехода может быть

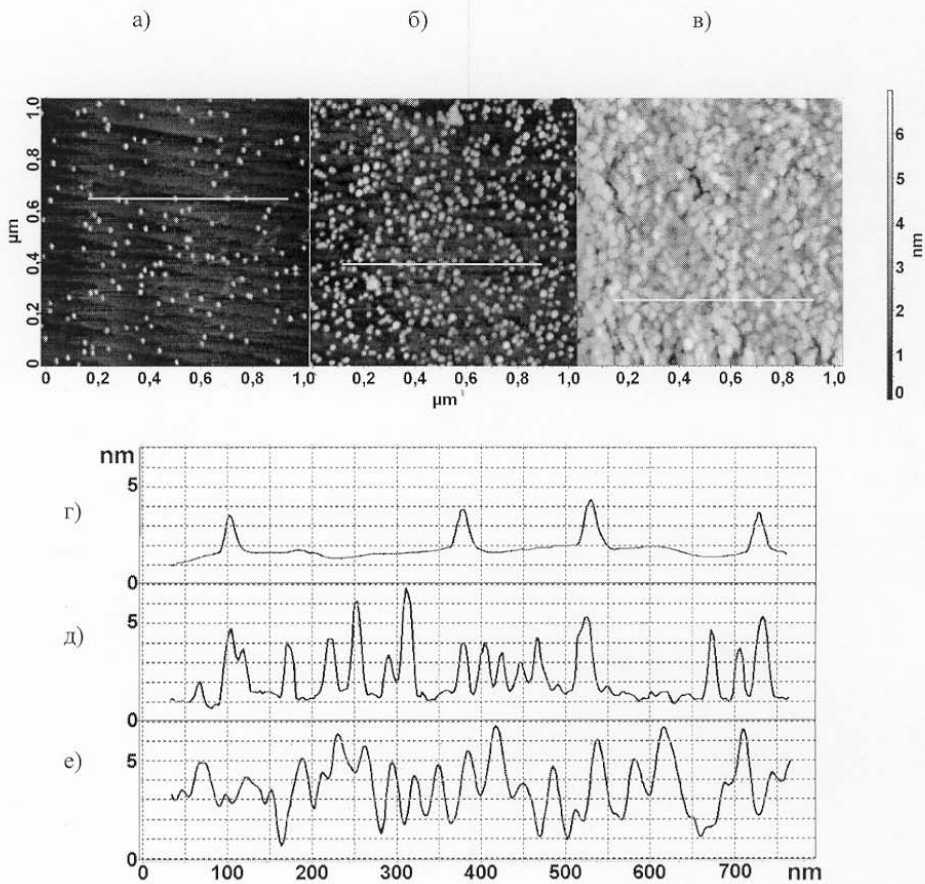


Рис. 3. АСМ-изображения и профили сечения по указанным линиям поверхности сапфира, облученного ионами висмута с флюоресценцией 2×10^{10} (а, г), 1×10^{11} (б, д) и 1×10^{12} см^{-2} (в, е).

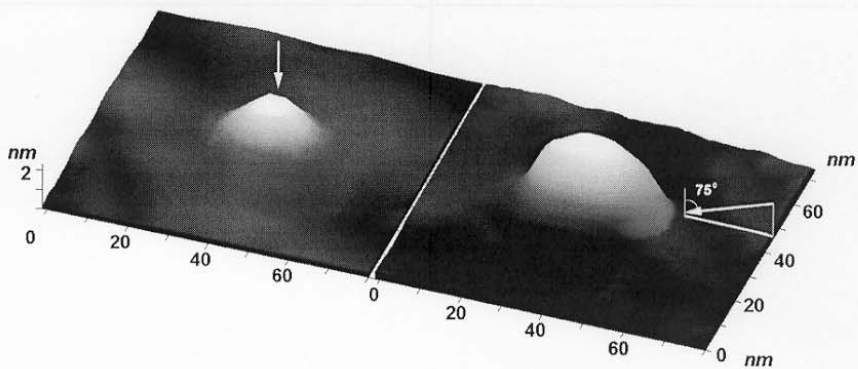


Рис. 4. АСМ-изображения хиллоков на поверхности сапфира, образованных в результате облучения ионами висмута при углах падения 0° (а, в) и 75° (б, г) к нормали. Направление входа ионов указано стрелками.

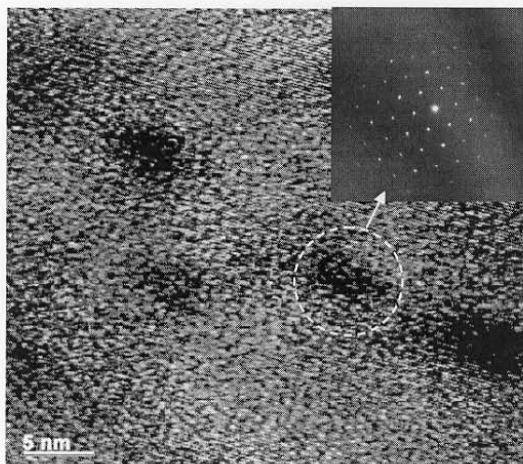


Рис. 5. Электронно-микроскопическое изображение структуры кристалла сапфира, облученного ионами Вi с энергией 710 МэВ до флюенса $7 \times 10^{12} \text{ см}^{-2}$ и дифракционная картина трековой области (в углу).

источником структурных нарушений, как в объеме, так и на поверхности облучаемых мишеней. В тоже время, экспериментальные данные по пороговым значениям плотности ионизации для разных оксидов не позволяют сделать вывод об определяющей роли локального разогрева в образовании дефектов на поверхности. Как установлено, хиллоки регистрируются на монокристалле MgO, имеющем более высокую, чем у сапфира температуру плавления (3245 K) при значительно меньших ионизационных потерях энергии. Генерация импульса напряжений, результатом действия которого является пластическая деформация в месте входа иона в мишень, возможна, при быстром разогреве и охлаждении вещества в объеме, окружающем траекторию иона. Приведенный расчет формы и величины импульса термоупругих напряжений, показывает, что их амплитуда в области трека значительно превосходит предел прочности сапфира. Так, максимальная величина радиальных напряжений при величине ионизационных потерь энергии 35 кэВ/нм даже на расстоянии несколько десятков нанометров от оси трека превышает макроскопический предел прочности сапфира более чем на порядок. Очевидно, что при рассмотрении напряжений такого уровня использовавшиеся в расчетах линейные уравнения применимы только для грубой оценки, однако данный результат позволяет сделать вывод, что импульс термоупругих напряжений способен вызвать значительные структурные нарушения.

Изменение профиля поверхности может быть также обусловлена действием в области трека ударной волны, являющейся следствием нелинейных процессов теплопереноса. Одним из характерных признаков вклада механизма ударной волны в образование дефектов на поверхности является выброс материала в направлении распространения фронта волны, наблюдаемый при облучении под углом. Этот эффект приводит к образованию асимметричных дефектов поверхности, имеющих специфическую форму со стороны входа иона. В нашем случае наблюдаемые при облучении под углом дефекты не имеют подобных морфологических особенностей, что говорит о том, что их формирование происходит за счет других механизмов.

Экспериментально установленным результатом проведенных экспериментов является высокий уровень статических механических напряжений, вызванных радиационными дефектами в локальном объеме, окружающем ионную траекторию. Уменьшение плотности этого объема по сравнению с плотностью исходного монокристалла даже в отсутствие фазового перехода может привести к вытеснению материала на поверхность и образования хиллоков. Формирование дефектов в приповерхностном слое может быть вызвано также действием ионно-взрывного пика, или “кулоновского взрыва”, так как квазинейтральность трековой области может быть нарушена на границах облучаемого

вещества (в местах входа и выхода иона) за счет того, что горячие электроны покидают поверхность кристалла. Предположение о том, что локальная деформация на поверхности кристаллов обусловлена электростатическими силами, действующими на ионы поверхностного слоя возбужденной области, согласуется с экспериментальными данными. “Кулоновский взрыв” в приповерхностной области позволяет объяснить независимость параметров хиллоков от температуры облучения и предварительно созданной дефектной структуры. При облучении под углом возбужденная область на поверхности имеет эллиптическую форму, поэтому можно ожидать формирования вытянутых хиллоков, симметричных относительно точки входа иона в мишень, что подтверждается результатами АСМ-измерений.

Полученные данные свидетельствуют, что пороговая плотность ионизации, начиная с которой происходит образование хиллоков на поверхности, коррелирует со степенью ионности в межатомном взаимодействии монокристаллов оксидов. Известно, что наибольшей структурной чувствительностью к нарушению зарядового баланса при радиационном воздействии среди диэлектриков обладают ЩГК, у которых этот параметр может составлять 0,92-0,94. Так, для образования точечных дефектов в LiF достаточно потерь энергии в несколько эВ, т.е. ионизации электронов внешних оболочек атомов. Исходя из этого, можно предположить, что в кристаллах с более высокой степенью ионности механизм кулоновского взрыва должен вносить больший вклад в образование структурных дефектов. Согласно нашим экспериментальным результатам, наименьшей пороговой плотностью ионизации обладает MgO ($(dE/dx)_{\text{пор.}} < 15,8$ кэВ/нм), доля ионной связи у которого составляет $r_i = 0,84$. Для Al_2O_3 , у которого $r_i = 0,59$, пороговая плотность ионизации выше ($16,6$ кэВ/нм $< (dE/dx)_{\text{пор.}} < 25,4$ кэВ/нм), а в случае SiC ($r_i = 0,12$) хиллоки не регистрируются даже при 34 кэВ/нм. Исходя из этих данных, можно сделать предположение, что чем выше доля ионной связи кристалла, тем меньше плотность ионизации, необходимая для формирования наблюдаемых нами дефектов на поверхности. Таким образом, динамические процессы релаксации напряжений в приповерхностном слое за счет радиационных повреждений, образованных по механизму кулоновского взрыва, также являются вероятным механизмом формирования наноразмерных дефектов на поверхности монокристаллов Al_2O_3 и MgO.

Цитируемая литература.

1. Ramos, S. M. M., Bonardi, N., Canut, B., Bouffard, S., Della-Negra, S., “Damage creation in α - Al_2O_3 by MeV fullerene impacts” // Nucl. Instrum. Methods, 1998, B143, pp. 319-332.

2. G. Hayderer, S. Cernusca, M. Schmid, P. Varga, HP. Winter, F. Aumayr, D. Niemann, V. Hoffmann, N. Stolterfoht, C. Lemell, L. Wirtz, J. Burgdörfer, "Kinetically Assisted Potential Sputtering of Insulators by Highly Charged Ions" // Phys. Rev. Let., 2001, v. 86, N 16, pp. 3530-3533.
3. S.J. Zinkle, J.W. Jones, V.A. Skuratov. "Microstructure of swift heavy ion irradiated SiC, Si₃N₄ and AlN" // Microstructural Processes in Irradiated Materials. Eds. G.E. Lucas, L. Snead, M.A. Kirk, Jr., R.G. Elliman. MRS Symp. Proc., 2001. v. 650, R3.19.1- R3.19.6.

Основные результаты и выводы

- I. Впервые методами АСМ проведено исследование поверхности монокристаллов Al₂O₃ и MgO, MgAl₂O₄, SiC, облученной ионами Bi и Kr с энергиями в интервале 0,6÷3,5 МэВ/а.е.м.. Установлено, что результатом воздействия единичных ионов является образование на поверхности оксидов магния и алюминия и шпинели наноразмерных структурных дефектов в виде конических хиллоков, геометрические размеры которых зависят от уровня удельных ионизационных потерь энергии тяжелых ионов. Изменений рельефа поверхности образцов SiC, которые можно было бы ассоциировать с воздействием высокоэнергетических ионов криптона или висмута в проведенных экспериментах не обнаружено.
- II. Определены верхние границы значений плотности ионизации в приповерхностном слое образцов, начиная с которых регистрируются радиационно-стимулированные изменения в профиле поверхности данных кристаллов. Эти пороговые значения составляют 25,4 кэВ/нм для сапфира, 15,8 кэВ/нм для оксида магния и 15,5 кэВ/нм для шпинели.
- III. Установлено, что геометрические параметры хиллоков на поверхности монокристаллов Al₂O₃, облученных ионами висмута с энергией 710 МэВ не зависят от температуры мишеней в интервале 80 ÷ 300 К и уровня радиационных повреждений исходных образцов (до 5×10⁻² смещений на атом). Показано, что зависимость формы хиллоков от угла падения ионов проявляется только при значительном отклонении от нормали к поверхности образца, более чем на 60 градусов.
- IV. Впервые по результатам электронно-микроскопических исследований микроструктуры образцов монокристаллов Al₂O₃, облученного ионами висмута с энергией 710 МэВ обнаружено, что разупорядоченные области вокруг ионных траекторий сохраняют кристаллическую структуру при (dE/dx)_{ион.} ≤ 41 кэВ/нм. Таким образом, установлено, что образование наноразмерных радиационных дефектов на поверхности Al₂O₃ не

связано с процессом перехода кристаллической фазы в аморфную в треках высокоэнергетических ионов в объеме кристалла.

- V. Рассмотрены вероятные механизмы формирования наноразмерных структур в виде хиллоков на поверхности Al_2O_3 и MgO . Показано, что пороговая плотность ионизации, начиная с которой происходит образование хиллоков на поверхности, коррелирует со степенью ионности в межатомном взаимодействии монокристаллов оксидов. Предполагается, что механические напряжения, следствием которых является деформация материала в месте входа иона в мишень, обусловлены увеличением локального объема в приповерхностной области за счет радиационных дефектов, образованных по механизму кулоновского взрыва.

Основное содержание диссертации изложено в следующих работах:

1. P. Markiewicz, S.R. Cohen, A.E. Efimov, A.A. Bukharaev, D.V. Ovchinnikov. "SPM Tip Visualization Through Deconvolution Using Various Characterizers: Optimization of the protocol for obtaining true surface topography from experimentally acquired images" // Probe Microscopy, 1999, vol. 1, p. 355-364.
2. V.A. Skuratov, D.L. Zagorski, A.E. Efimov, V.A. Kluev, Yu.P. Toporov, B.V. Mchedlishvili. "Swift heavy ion irradiation effect on the surface of sapphire single crystals" // Radiation Measurements, 2001, vol. 34/1-6, p. 571-576.
3. В.А. Скуратов, А.Е. Ефимов, Д.Л. Загорский. "Модификация поверхности Al_2O_3 высокоэнергетическими ионами висмута" // Физика Твёрдого Тела, 2002, т. 44, вып. 1, с. 165-169.
4. V.A. Skuratov, P. Nagy, A.E. Efimov, K. Havancsak. "Surface response of Al_2O_3 single crystals on hundred MeV heavy ion irradiation" // Abstracts of EuNITT Workshop on Ion Track Technology, February 25-26, 2002 Caen, France, p. 24.
5. V.A. Skuratov, S.J. Zinkle, A.E. Efimov, K. Havancsak. "Swift heavy ion-induced modification of Al_2O_3 and MgO surfaces" // Nucl. Instr. Meth., 2003, B203, p. 136-140.
6. В.А. Скуратов, А.Е. Ефимов, К. Хаванчак. "Наноразмерные дефекты на поверхности Al_2O_3 и MgO , вызванные тяжелыми ионами высоких энергий". Материалы IV международной конференции "Взаимодействие излучений с твердым телом", Минск, Беларусь, 6-9 октября 2003 г, с. 197-209.
7. V.A. Skuratov, S.J. Zinkle, A.E. Efimov, K. Havancsak. "Surface defects in Al_2O_3 and MgO irradiated with high energy heavy ions" // Abstracts of 13th International Conference on Surface Modification of Materials by Ion Beams, September 21 -26, 2003, San Antonio, Texas, USA, p. 55.

Макет Н. А. Киселевой

Подписано в печать 06.02.2004.

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

Усл. печ. л. 1,06. Уч.-изд. л. 1,5. Тираж 100 экз. Заказ № 54294.

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/