

БИМОДАЛЬНОСТЬ РАСПРЕДЕЛЕНИЯ ЗЁРЕН ПО РАЗМЕРАМ В ПЛЕНКАХ СЕРЕБРА, ОБЛУЧЕННЫХ ИОНАМИ ГЕЛИЯ

В.В. Красильников, С.Е. Савотченко
ГОУ ВПО «Белгородский государственный университет»
E-mail: kras@bsu.edu.ru; savotchenko@bsu.edu.ru

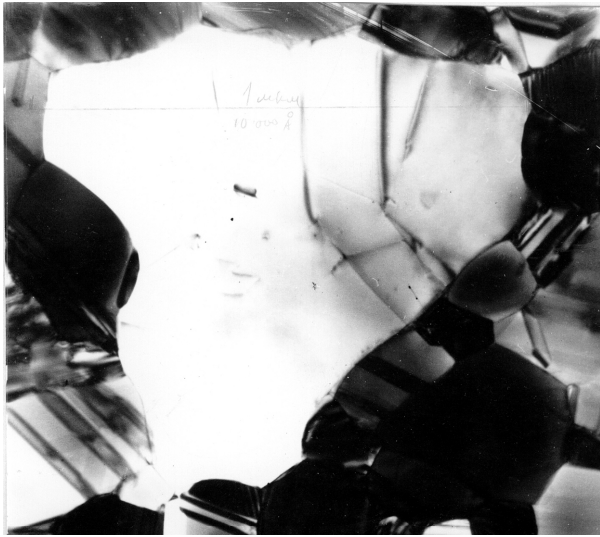
Поликристаллические серебряные пленки (толщиной 100 ± 5 нм) получались осаждением на оптическое стекло (класс поверхности 14). Скорость конденсации оценена как $\sim 0,5$ и $1,5$ нм/с. Они помещались на металлические двойные спаренные диски диаметром ~ 3 мм, с центральным отверстием диаметра $\sim 0,7$ мм и с отверстиями диаметра $0,4$ мм, смещенными от центра. Приготовленные таким образом пленки отжигали в вакууме (10^{-7} Па) при $T \sim 673$ К в течение одного часа. Степень чистоты пленок проверяли методом обратного резерфордовского рассеяния протонов с энергией $1,6$ МэВ [1-3].

Средние размеры 300 кристаллитов определялись на негативных микроснимках, полученных при увеличениях $\times 15000$, в свете отражений когерентного рассеяния (111), (200), (220), в исходной и облученной ионами гелия пленок серебра.

Исходные (необлученные) поликристаллические пленки серебра имели полидисперсную структуру со средним размером кристаллитов ~ 150 нм. Интегральная интенсивность дифракционного спектра электронограмм показала, что в пленке серебра преимущественная ориентация плоскости максимальной упаковки (111) проходит параллельно поверхности пленки. Основную фракцию объема пленки составляли кристаллиты ориентации (220).

Полученные пленки серебра были облучены при $T \sim 293$ К сепарированным пучком ионов гелия с энергией 10 кэВ в диапазоне доз $1 \cdot 10^{12} \div 5 \cdot 10^{16}$ ион/см² и плотностью тока $0,1 \div 0,3$ мкА/см². Облучение ионными пучками, исключаяющими заметное загрязнение пленок примесями проводилось в вакууме при давлении $P \sim (1 \div 2) \cdot 10^{-6}$ Па.

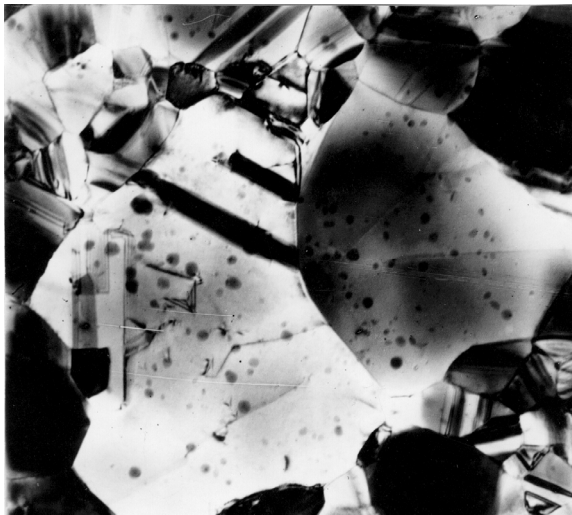
Показано, что при последовательном ионном облучении пленки в диапазоне доз от $1 \cdot 10^{13}$ до $1 \cdot 10^{16}$ см⁻², величина среднего размера $L_{(220)}$ кристаллитов монотонно уменьшается почти вчетверо (от 200 до 50 нм), то есть, происходит диспергирование кристаллитов поликристаллической пленки. При этом в кристаллитах пленки серебра образуется высокодисперсная композиционно-структурная неоднородность в виде дислокаций и других структурных дефектов. С ростом дозы облучения $\sim 1 \cdot 10^{16}$ ион/см² и выше прослеживается процесс формирования и коагуляции газовых микропузырьков по границам зерен и дислокациям. На электронных микрофотографиях рис. 1 показана последовательность микроструктурных изменений, индуцированных ионной бомбардировкой He^+ с энергией 10 кэВ в тонкой поликристаллической пленке серебра.



(a)



(b)



(c)



(d)

Рис.1. Микрофотографии светлопольного изображения микроструктуры пленки серебра, где показано разрушение одного и того же блок-кристаллита ориентации (022) исходной пленки [4]:

(a) – исходная; (b) – доза $\sim 1 \cdot 10^{14}$ ион/см²; (c) $\sim 1 \cdot 10^{15}$ ион/см²; (d) $\sim 1 \cdot 10^{16}$ ион/см².

Проведен статистический анализ распределения средних размеров кристаллитов в облученных пленках при различных температурах испытаний. На рис. 2 приведены гистограммы для различных ориентаций кристаллитов, характеризующих полидисперсность облученных образцов пленок серебра. По оси абсцисс отложены средние размеры L кристаллитов в нанометрах (nm), по оси ординат – приведенное содержание кристаллитов данного размера в образце n/n_0 , где n – число кристаллитов, имеющих размеры из указанного интервала длины h , $n_0 = Nh$, N – общее число измеренных кристаллитов.

Полученные результаты позволяют утверждать, что при температурах до 500°C распределения имеют одномодальный характер, а при повышении

температуры характер распределения меняется, и оно становится двуимодальным, как видно из рис. 2.

Для интерпретации экспериментальных данных предлагается статистическая модель. В рамках этой модели предполагается, что при температурах ниже 500°C распределение кристаллитов по размерам подчиняется логнормальному закону при $L > 0$:

$$f(L) = \frac{1}{L\sigma\sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{\ln^2(L/a)}{2\sigma^2}\right), \quad (1)$$

где a и σ (среднее квадратическое (стандартное) отклонение) - параметры логнормального распределения, $f(L) = 0$ при $L < 0$. Методом наименьших квадратов рассчитаны параметры этого распределения (таблица 1).

Таблица 1. Параметры логнормального распределения (1) в нм.

Порядок рефлекса		100°C	250°C	400°C
(111)	a	28,34	25,53	25,128
	σ	0,375	0,565	0,607
(200)	a	27,351	19,266	19,108
	σ	0,278	0,421	0,473
(220)	a	33,07	14,398	20,675
	σ	0,379	0,624	0,712
(311)	a	31,705	29,42	31,748
	σ	0,392	0,505	0,577

При температурах более 500°C распределение кристаллитов по размерам подчиняется бимодальному распределению, которое представляет собой сумму двух простых логнормальных распределений с различными a_1 , a_2 , σ_1 и σ_2 :

$$f_b(L) = \frac{1}{2L\sigma_1\sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{\ln^2(L/a_1)}{2\sigma_1^2}\right) + \frac{1}{2L\sigma_2\sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{\ln^2(L/a_2)}{2\sigma_2^2}\right), \quad L > 0. \quad (2)$$

Были рассчитаны параметры бимодального распределения (2) для аппроксимации результатов наблюдений при температуре 550°C (таблица 2).

Таблица 2. Параметры бимодального распределения (2) в нм.

Порядок рефлекса	a_1	σ_1	a_2	σ_2
(311)	26	0,78	215	0,78
(220)	102	0,37	305	0,39
(200)	32	0,53	145	0,42
(111)	41	0,59	130	0,40

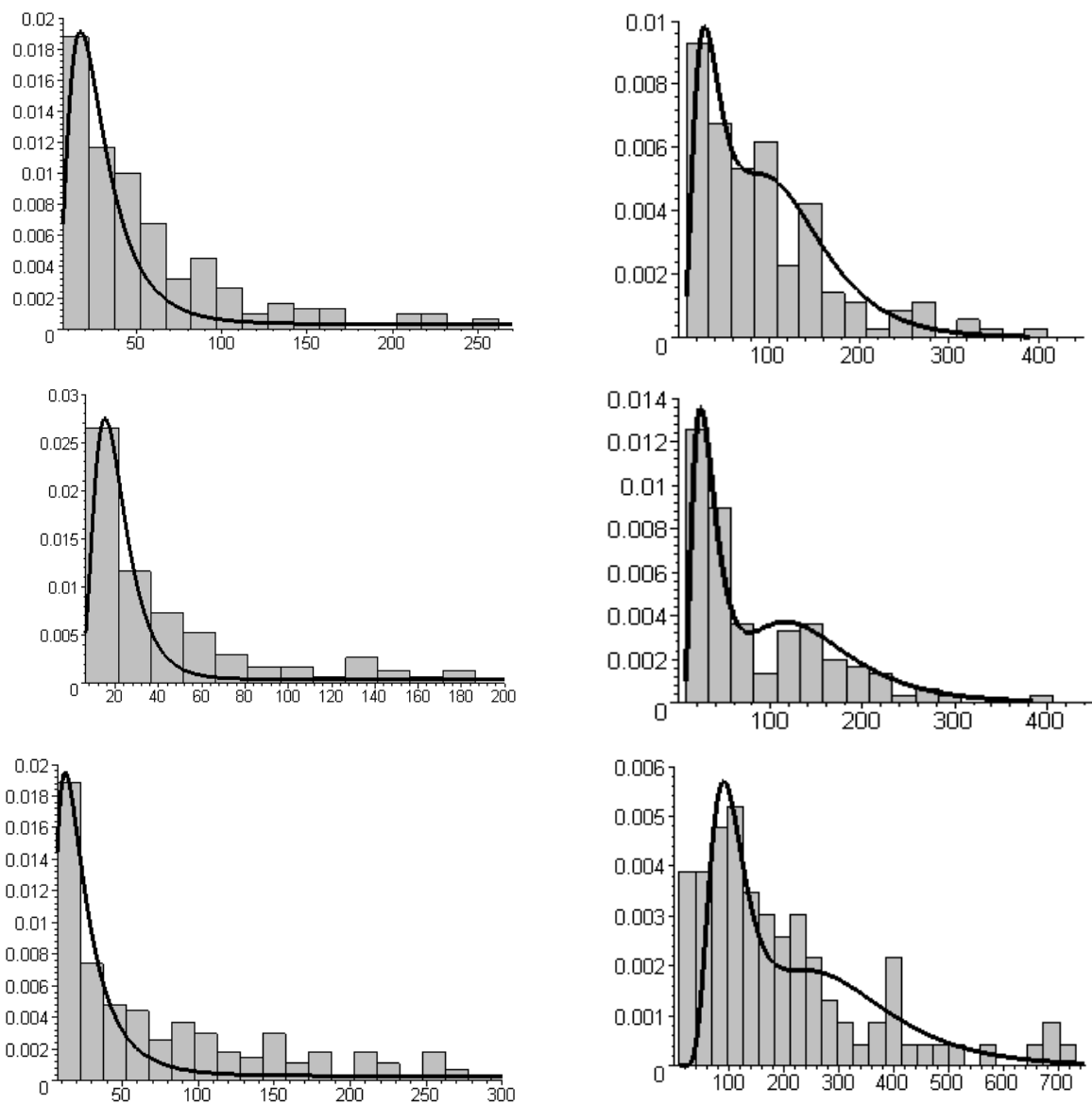


Рис.2. Распределения кристаллитов по размерам. Сплошные линии – графики плотностей логнормального (1) и двумодального логнормального распределения (2) для значений параметров из таблиц 1 и 2.

Определены средние размеры кристаллитов L_c при различных температурах. Установлено, что чем выше температура наблюдений, тем крупнее оказываются средние размеры кристаллитов в пленке (см. рис. 3). Зависимость среднего размера кристаллитов от температуры является нелинейной.

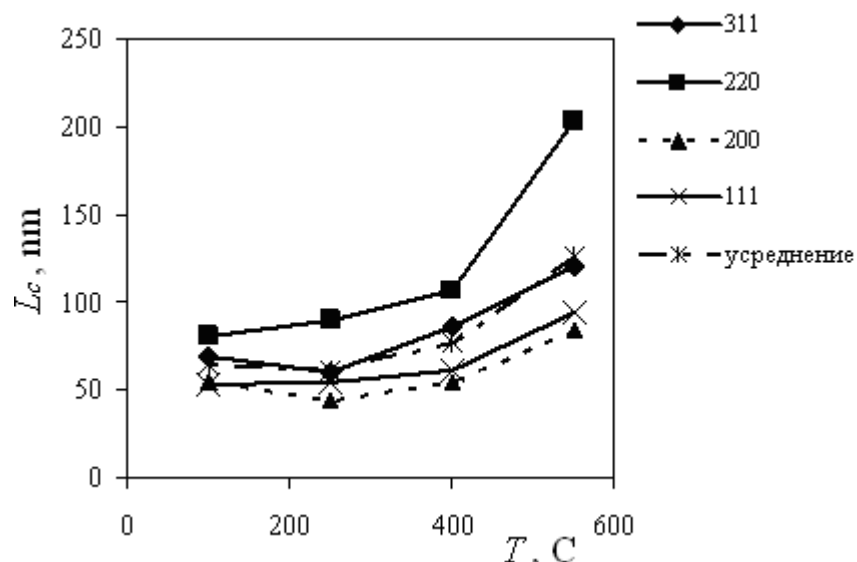


Рис.3. Зависимость среднего размера кристаллитов от температуры.

Процессы, протекающие в пленках серебра под действием облучения ионами гелия: 1) процесс измельчения кристаллитов в пленках; 2) процесс образования гелиевых микропузырьков, с высокой вероятностью за счет оствальдовского созревания, когда ионы гелия увеличивают размеры уже имеющихся пузырьков, и создаются значительные внутренние напряжения; 3) растет суммарная плотность дефектов в кристаллитах: дислокации, дефекты упаковки, микродвойники, газовые поры, вакансии; 4) при температурах выше 500°C вступает в силу процесс коалесценции дисперсных частиц, что подтверждается наличием бимодального распределения кристаллитов по размерам.

Выводы: 1) предложенная статистическая модель, адекватно описывает экспериментальные данные, обнаружившие, что при температурах наблюдений, выше 500°C, происходит переход от одномодального распределения к бимодальному. Одномодальное распределение аппроксимировано логнормальным распределением, а бимодальное – суммой двух логнормальных функций. 2) установлено наличие зависимости средних размеров кристаллитов от температуры пленки.

1. Н.В. Камышанченко, И.С. Мартынов, Н.Н. Матюшенко, И.М. Неклюдов, В.Ф. Рыбалко. Структурные изменения в пленках серебра при облучении ионами гелия. Научные ведомости. Сер. «Физика» БелГУ. Белгород, №1(10), с.120-130, 2000.

2. И.С. Мартынов, В.В. Красильников, И.Н. Перепелкин, В.В. Ружицкий, С.Е. Савотченко, В.В. Сирота, Яссер Эль Генди. Особенности процессов структурных превращений в тонких пленках серебра при облучении ионами гелия. Деформация и разрушение материалов, № 4, с. 34-39, 2006.

3. И.С. Мартынов, В.В. Красильников, И.Н. Перепелкин, С.Е. Савотченко, Яссер Эль Генди. Субструктурные изменения в серебре при облучении ионами гелия. ВАНТ, Серия Материаловедение и новые материалы, Вып. 1(66), с. 448-451, 2006.