

ОБЗОРЫ АКТУАЛЬНЫХ ПРОБЛЕМ

Модификация металлических материалов импульсными мощными пучками частиц

В.И. Бойко, А.Н. Валяев, А.Д. Погребняк

Приведен подробный анализ современного состояния исследований (включая работы авторов) по модификации железа, сталей, сплавов и некоторых металлических систем импульсными мощными электронными и ионными пучками средней интенсивности 10^6 – 10^9 Вт см $^{-2}$. Описаны многие процессы, определяющие дефектную структуру и свойства, рассмотрены также формирование упругопластических и ударных волн, перемешивание мультислоев, осаждение тонких пленок и нанофазный синтез порошков. Результаты, полученные в различных исследовательских центрах, демонстрируют широкие возможности такой обработки материалов и улучшение эксплуатационных характеристик изделий из них.

PACS numbers: 41.75.-i, 61.80.-x, 81.15.-z, 81.40.-z

Содержание

1. Введение (1243).
2. Структурные и фазовые превращения в α -Fe при воздействии импульсного сильноточного электронного пучка (1245).
2.1. Модификации в зоне теплового влияния. 2.2. Изменения дефектной структуры и механических свойств α -Fe, закаленного из жидкого состояния.
3. Модификации структуры и механических свойств металлов при мощном импульсном ионном облучении (1247).
3.1. Дефектообразование в облученном α -Fe и его влияние на микротвердость. 3.2. Анализ остаточных деформационных состояний. 3.3. Влияние различных видов радиации на глубинное упрочнение. 3.4. Кинетическая модель упрочнения.
4. Плавление и перемешивание двухслойных металлических систем при облучении низкоэнергетическим сильноточным электронным пучком (1254).
5. Массоперенос при воздействии интенсивных импульсных пучков заряженных частиц (1257).
5.1. Процессы массопереноса в поверхностных слоях. 5.2. Массоперенос в поле ударной волны.

В.И. Бойко. Томский политехнический университет, 634050 Томск, Российская Федерация
Тел. (8382) 41-89-02. Факс (8382) 41-89-01
E-mail: boiko@phdt.tpu.ru
А.Н. Валяев. Восточно-Казахстанский технический университет, 492010 Усть-Каменогорск, ул. Луговая 19, Казахстан
Тел. (3232) 40-68-63. Факс (3232) 26-89-31
E-mail: root@vktu.iatp.kz
А.Д. Погребняк. Сумський інститут модифікації поверхності, 244034 Суми, просп. Шевченко 17, а/я 163, Україна
Тел. (0542) 22-03-38. Факс (0542) 27-50-02
E-mail: pogreb@diskret.sumy.ua

Статья поступила 24 апреля 1998 г.,
после доработки 27 мая 1999 г.

6. Формирование упругопластических волн в металлах при воздействии интенсивных пучков заряженных частиц (1258).
 7. Синтез тонких пленок и ультрадисперсных порошков при воздействии интенсивных пучков заряженных частиц (1260).
7.1. Общие закономерности процесса аблияции. 7.2. Получение тонких пленок. 7.3. Синтез ультрадисперсных наноразмерных порошков.
 8. Улучшение эксплуатационных характеристик металлов, сплавов и изделий из них электронными и ионными пучками (1265).
 9. Заключение (1268).
- Список литературы (1270).

1. Введение

В последние десятилетия появление оптических квантовых генераторов, а затем ускорителей сильноточных электронных пучков (СЭП) и мощных импульсных пучков ионов (МИП) создало уникальную возможность получения новых видов воздействий концентрированных потоков энергии на материалы. В отличие от традиционных способов, например таких, как ударно-волновое нагружение, закалка и отжиг сталей, они включают одновременно радиационное, тепловое и механическое воздействия. Обнаружены уникальные эффекты: конденсация экситонов в полупроводниках при лазерном облучении [1, 2]; хрупкое разрушение всех классов твердых тел под воздействием СЭП [3–8]; поверхностное [9–18] и глубинное [9–15, 19–21] упрочнение металлов, облученных МИП; генерация упругих [14, 15, 22–27] и ударных [5, 15, 28] волн; интенсивная аблияция вещества в плазменном состоянии при облучении СЭП [4] и МИП [16–18, 29–37]. Большинство этих явлений носит нелинейный характер и наблюдается при интенсивностях и флюенсах, превышающих некоторые критические значения. Радиационно-стимулированные процессы имеют сложную физическую природу, связанную с особенностями

трансформации и аккумуляции поглощенной энергии при коллективных сверхплотных возбуждениях электронной и атомной подсистем твердых тел [7, 38]. Это способствовало развитию новых фундаментальных направлений в физике высоких плотностей энергии, включая получение управляемого термоядерного синтеза [39, 40].

Возникли новые направления в радиационном материаловедении, связанные с решением прикладных задач ядерной энергетики, аэрокосмической промышленности, машиностроения, микроэлектроники и др. Существующие традиционные химико-термические методы обработки не отвечали решению новых задач и практически исчерпали свои возможности, а ионная имплантация не всегда давала нужные результаты. Эффективным оказалось использование лазерного излучения, что отражено, например в [41–46]. Однако лазерные пучки имеют небольшой коэффициент полезного действия, малые площади обработки, высокую стоимость получения и (в отдельных случаях) высокий коэффициент отражения от поверхностей мишеньей.

Сейчас в мире по известным причинам резко сократилось финансирование военных программ разработки пучкового оружия, поэтому возникла необходимость и появилась возможность использования существующих сильноточных ускорителей для новых целей и задач. В ряде стран появились свои, в том числе и конверсионные программы. Такие ускорители сейчас разрабатываются для конкретных областей применения [47]. Основными их параметрами являются состав пучка, энергия частиц, интенсивность и длительность облучения. Значениями этих параметров, условиями облучения и свойствами материала определяются скорости нагрева, охлаждения, плавления и испарения материала, абляция поверхностных слоев, термические напряжения, генерация упругих и ударных волн. Указанные процессы обусловливают модифицированные свойства материалов не только в поверхностных слоях, но и на глубинах, на порядки превышающих пробеги частиц пучка, т.е. возникают эффекты дальнодействия.

Для модификации материалов использовались низкоэнергетические (до десятков кэВ) и высокоэнергетические (несколько МэВ) СЭП с длительностью импульса 10^{-8} – 10^{-6} с, плотностью тока до нескольких kA cm^{-2} и флюенсами до сотен Дж см^{-2} на импульс. В ионной обработке эффективными оказались пучки легких ионов (водород, углерод, азот и др.), поскольку, во-первых, их легче получить и, во-вторых, они имеют существенно большие пробеги, чем тяжелые ионы. Параметры таких пучков следующие: энергии 0,1–2 МэВ, ток в импульсе 5–50 kA , интенсивности и флюенсы 10^7 – 10^{10} Вт см^{-2} и 1–100 Дж см^{-2} имп. $^{-1}$, соответственно. Такие пучки создают в приповерхностных слоях металлов сверхбыстрый нагрев и охлаждение со скоростями 10^8 – 10^{11} K s^{-1} при минимальном теплоотводе, которые в сочетании с высокими пространственными градиентами температур 10^6 – 10^7 K cm^{-1} приводят к уникальным модификациям свойств. На порядки отличающиеся пробеги электронов и ионов пучков при одинаковой их энергии обуславливают специфику и различие некоторых наблюдаемых макрохарактеристик.

СЭП и МИП имеют ряд преимуществ перед лазерными пучками: значительно больший КПД, меньшую

стоимость получения на единицу энергии, большие площади обработки (до 10^3 см^2), высокую степень поглощения в любых материалах. Пучки легких ионов способны обеспечивать модификацию на глубинах, в 10–20 раз превышающих таковые при имплантации тяжелыми ионами, к тому же с меньшими на порядки флюенсами. Успех применения СЭП и МИП стимулировал появление новых широкомасштабных коммерческих технологий. В Японии создана технология по интенсивному импульсному ионно-пучковому испарению (Intense Pulsed Ion Beam Evaporation, IBE), применяемая для получения тонких пленок в электронной и оптической промышленности, а также для диагностики интенсивного излучения. В США появилась программа по ионной поверхностной обработке (Ion Beam Surface Treatment, IBEST).

В настоящее время сформировались следующие основные направления по применению МИП и СЭП в технологиях: получение сверхплотной плазмы для управляемого термоядерного синтеза [39, 40]; имплантация и отжиг полупроводников [47–49]; модификация прочностных [9–15, 19–22, 41–47], триботехнических [10, 50–52] и антикоррозионных [50, 53, 54] свойств металлов и сплавов; синтез новых композиционных материалов, включая метастабильные фазы и соединения [11, 55, 56]; получение тонких пленок и покрытий с заданной структурой и свойствами посредством осаждения аблиционной плазмы [16–18]; очистка [56–58], полировка [56] и глянцевание [56] поверхностей; нанофазный порошковый синтез [16, 18]; разрушение и резка твердых материалов [4–8, 59]. Реализация нужной технологии достигается определенным выбором интенсивности и времени облучения.

В обзоре принят следующий порядок разделов. Раздел 2 включает основные результаты исследований структурно-фазовых превращений в α -Fe при облучении СЭП. В разделе 3 отражены аналогичные данные при воздействии МИП. Показана определяющая роль генерируемой ударной волны в формировании превращений на больших глубинах и предложена кинетическая модель упрочнения. Результаты экспериментальных исследований процессов перемешивания при облучении СЭП двухслойных металлических систем, представляющих собой тонкую тугоплавкую пленку Mo или Ta на подложке из железа, приведены в разделе 4. В разделе 5 анализируются возможные модели массопереноса. Поведение вещества при воздействии упругопластических волн, генерируемых интенсивным облучением, описано в разделе 6. Технологии получения тонких пленок посредством осаждения образующейся при облучении аблиционной плазмы представлены в разделе 7. Показаны возможности синтеза пленок со специальными свойствами и ультрадисперсных наноразмерных порошков. Некоторые типичные примеры модификации эксплуатационных характеристик металлов, сплавов и изделий из них после пучковой обработки описаны в разделе 8. В заключении отмечается, что материалы обзора демонстрируют хорошие перспективы использования мощных импульсных пучков для модификации материалов.

Представленный список литературы не претендует на полноту, но, по мнению авторов, отражает наиболее значимые работы отечественных и зарубежных исследователей по теме обзора.

2. Структурные и фазовые превращения в α -Fe при воздействии импульсного сильноточного электронного пучка

В первых работах СЭП использовались для отжига дефектов в имплантированных слоях полупроводников [55, 60, 61]. Однако сначала они не нашли широкого применения из-за неоднородностей плотности плазмы, получаемой с помощью взрывоэмиссионных катодов, а также вследствие появления значительных термонарежений в поверхностных слоях, создающих микро- и макротрешины. Затем СЭП начали применять для модификации металлов. Структурно-фазовые превращения в их поверхностных слоях определяются исходным состоянием материала, динамикой температурных полей и полей термонарежений в области поглощения пучка и в примыкающей к ней так называемой зоне теплового влияния (ЗТВ) высоких температур. На больших глубинах эти превращения связаны с воздействием упругих, упругопластических и ударных волн. Характер дефектообразования для этих двух случаев различен, поэтому каждый случай рассматривается отдельно.

2.1. Модификации в зоне теплового влияния

В работах [48–52] исследовались превращения в чистом (10^{-4} масс. % углерода) α -Fe со средним размером зерна 10 мкм по глубине ЗТВ после облучения низкоэнергетическим СЭП (НСЭП) с параметрами: длительность импульса $\tau_p = 0,8$ мкс, энергия электронов в спектре 10–20 кэВ, флюенс $\Phi = 2-2,5 \text{ Дж см}^{-2}$ имп. $^{-1}$. Число импульсов варьировалось от 1 до 300 с частотой 0,1 Гц. На поверхности наблюдались оплавленные участки размером ~ 30 мкм. Во всех зернах видны следы пластической деформации из-за воздействия термонарежений, по характеру соответствующих высокотемпературной деформации при обычном импульсном нагреве. В поверхностном слое (< 5 мкм) в исходных зернах, преимущественно у их границ, появлялись зародыши рекристаллизации размером 2–5 мкм. Вместе с ними в одном зерне наблюдались участки с разориентированной ячеистой дислокационной субструктурой, а внутри исходных зерен, несмотря на высокую степень деформации, дислокации практически отсутствовали, что свидетельствует о высокотемпературном отжиге после деформации. Следовательно, в этом слое пластическая деформация сопровождалась первичной рекристаллизацией. На глубине > 5 мкм нагрев заметно не влиял на дислокационную субструктуру, характерную для ударного нагружения. С глубиной плотность дислокаций монотонно уменьшалась. Рассмотренные законоомерности сохранялись с ростом числа импульсов, при этом возрастила лишь степень пластической деформации. Сопоставление дислокационных структур, полученных при одноосном растяжении и после воздействия НСЭП (300 имп.), показало, что на глубинах 20–50 мкм степень пластической деформации составляла 2–5 %.

Изменение зеренной и дислокационной структуры по глубине связано с быстрым нагревом поверхностных слоев до температуры плавления и выше и последующим быстрым их охлаждением за счет теплоотвода, а также с воздействием волн напряжений [51, 52]. Проанализируем условия формирования микроструктуры по глубине. На рисунке 1 показаны зависимости температуры от времени на различных глубинах при облучении

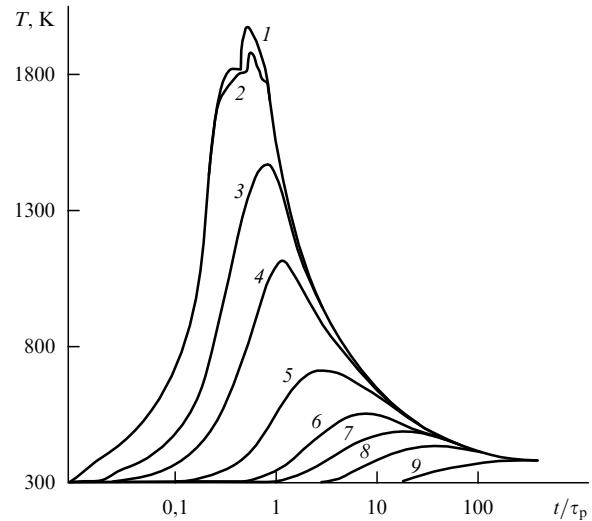


Рис. 1. Зависимость температуры от времени на различных глубинах x от поверхности α -Fe при облучении НСЭП (10–20 кэВ, 0,8 мкс, $2,2 \text{ Дж см}^{-2}$ имп. $^{-1}$); x равно (в мкм): 1 — 0,2; 2 — 0,2; 3 — 1; 4 — 2; 5 — 5; 6 — 10; 7 — 16; 8 — 20; 9 — 25.

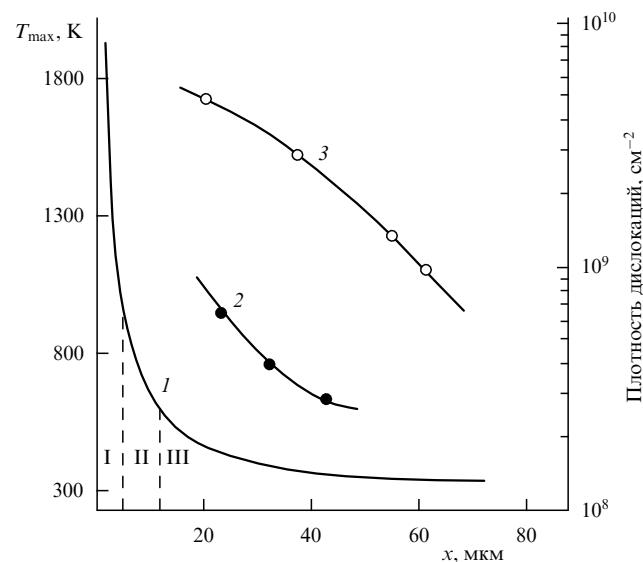


Рис. 2. Изменение максимальной температуры (кривая 1) и плотности дислокаций в зависимости от глубины в α -Fe после облучения НСЭП (10–20 кэВ, 0,8 мкс, $2,2 \text{ Дж см}^{-2}$ имп. $^{-1}$) с числом импульсов $N = 5$ (кривая 2) и $N = 300$ (кривая 3).

флюенсом $\Phi = 2,2 \text{ Дж см}^{-2}$ имп. $^{-1}$. Плавится поверхностный слой толщиной 0,2 мкм. Скорости нагрева перед началом плавления и охлаждения поверхности сразу после окончания кристаллизации составляют 5×10^9 и 10^{10} К с^{-1} , соответственно. Вне зоны поглощения (> 2 мкм) из-за конечной скорости распространения тепла максимальная температура (T_{\max}) достигалась после окончания импульса. Скорости нагрева, охлаждения и T_{\max} , достигаемая в данной точке, уменьшались в зависимости от глубины (рис. 2, кривая 1). Если к концу импульса толщина разогретого слоя составляла ~ 15 мкм (см. рис. 1), то после окончания облучения в результате перераспределения тепла она увеличивалась до 70 мкм. Температура слоя уменьшалась до комнатной за время $\sim 10^{-3}$ с.

Другим фактором, влияющим на микроструктуру железа, является волна напряжения, формируемая в приповерхностном слое толщиной ~ 1 мкм (пробег электронов пучка). Как показано в [51], она имеет bipolarный вид и состоит из импульсов сжатия и растяжения длительностью $\sim 10^{-6}$ с. По оценкам ее амплитуда ($1-8,5$ ГПа) существенно превышает динамический предел текучести железа. Эта волна формирует дислокационную субструктуру, а из-за ее затухания плотность дислокаций монотонно уменьшается с глубиной.

Фронт волны напряжения значительно опережает фронт тепловой волны. Поэтому пластическая деформация сопровождается процессами возврата, одним из которых является рекристаллизация. Сопоставим результаты структурного анализа с расчетами тепловых полей. На графике зависимости T_{\max} от глубины видны три области (см. рис. 2, кривая 1). В первой ($x < 5$ мкм) $T_{\max} \geq 0,4T_m$ (для железа температура рекристаллизации составляет $0,4T_m \sim 750$ К, где $T_m = 1810$ К — температура плавления Fe). Поэтому здесь возможны процессы рекристаллизации и интенсивного перераспределения дислокаций, уменьшающие их плотность. Это хорошо согласуется с экспериментом. Подобный подход позволяет исследовать температурно-временные процессы на начальных стадиях рекристаллизации. Например, согласно расчетам, рост зародышей рекристаллизации происходит за время $\sim 5 \times 10^{-6}$ с. Следовательно, скорость их роста составляет $0,4-1$ м с^{-1} . Вторая область расположена на глубине 5–12 мкм, где температура достигает 500–700 К. При таких температурах возможно перераспределение дислокаций без существенного уменьшения их плотности, поэтому вероятность рекристаллизации мала. На больших глубинах (область III) их перераспределения не происходит, поскольку здесь температура намного ниже температуры рекристаллизации [53]. Действительно, в этой области, как следует из эксперимента (см. рис. 2, кривые 2 и 3), плотность дислокаций монотонно уменьшается с глубиной, т.е. влияние температуры несущественно. Таким образом, характер структурных превращений по глубине в облученном α -Fe определяется пластической деформацией под действием волн напряжений и последующей рекристаллизацией, вызванной распространением тепловой волны.

2.2. Изменения дефектной структуры и механических свойств α -Fe, закаленного из жидкого состояния

Интерес представляет микроструктура приповерхностного слоя толщиной ~ 1 мкм, в котором одновременно действуют высокие температуры и значительные термоупругие напряжения. Из-за быстрой закалки из расплава здесь возможно образование точечных дефектов вакансационного типа [54]. В [62, 63] методами резерфордовского обратного рассеяния канализированных ионов (POP/К), электронно-позитронной аннигиляции (ЭПА), вторичной ионно-массовой спектроскопии (ВИМС) и просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ) исследовалось влияние дефектной структуры α -Fe, созданной облучением, на изменение его микротвердости и износа. Полученные результаты анализировались с помощью расчетов тепловых полей.

Рекристаллизованные образцы, содержащие примесные элементы C, N и O в количестве соответственно

$< 0,008$, $< 0,0014$ и $< 0,0001$ масс. %, с мелким (десятки микрон) и крупным (2–4 мм) зерном облучались НСЭП. Минимальный флюенс соответствовал пороговому значению, при котором на поверхности возникал рельеф, характерный для застывшего расплава. В методе ЭПА использовался источник позитронов $^{22}\text{Na}(\beta^+, \gamma)$, время жизни которого описывалось двумя компонентами $\tau_1 = 250$ пс и $\tau_2 = 450$ пс с интенсивностями $I_1 = 6,2\%$ и $I_2 = 2,5\%$. При $\Phi = 3,3$ Дж см^{-2} имп. $^{-1}$ позитроны захватывались дефектами, время жизни которых имеет две компоненты: $\tau_1 = 108$ пс и $\tau_2 = 195 \pm 3$ пс. Согласно теоретической работе [64] и экспериментальному исследованию [53], значение τ_2 соответствует времени жизни позитрона, захваченного дивакансией, а τ_1 — времени жизни позитрона, локализованного в чистом "бездефектном" материале. Рост Φ до 4,2 Дж см^{-2} имп. $^{-1}$ изменяет значения τ и I : $\tau_1 = 116$ пс, а $\tau_2 = 225 \pm 4$ пс, причем увеличение τ_2 сопровождается снижением I_2 , что указывает на уменьшение концентрации вакансационных кластеров. С учетом данных [52] можно предположить, что при $\Phi = 4,2$ Дж см^{-2} имп. $^{-1}$ образуются более крупные дефекты (кластеры из трех вакансий и более). Значение $\tau_1 = 116$ пс превышает время жизни позитрона в "бездефектном" железе (108 пс). По-видимому, оно включает в себя время жизни позитронов, локализованных на дислокациях, которые по сравнению с вакансиями и кластерами вакансий являются более мелкими ловушками. Авторы [63], фиксируя $\tau'_1 = 108$ пс, получили $\tau'_2 = 165 \pm 2$ пс. Таким образом, позитроны, аннигилирующие в объеме, имеют время жизни $\tau'_1 = 108$ пс, а значение $\tau'_2 = 165 \pm 2$ пс соответствует позитронам, захваченным дислокациями, что хорошо согласуется с известными данными. Отметим, что информация, полученная этим методом, поступает из слоя толщиной от 0,1 до 40 мкм.

Энергетические спектры канализированных ионов $^4\text{He}^{++}$, измеренные для ориентированного зерна в приповерхностном слое α -Fe до и после облучения, представлены на рис. 3. В исходном состоянии α -Fe имеет

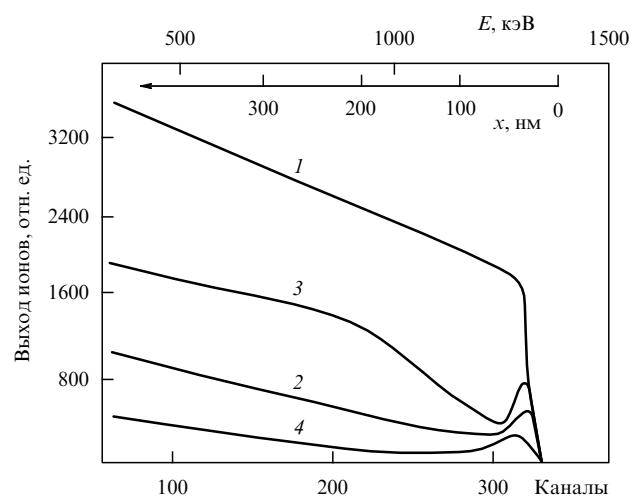


Рис. 3. Спектры обратного рассеяния (1) и канализования ионов гелия (энергия ионов 2 МэВ) в направлении [100] для зерен железа, ориентированных вдоль плоскости (100): 1 — исходный образец (неориентированный кристалл); 2 — исходный образец с крупным зерном (~ 4 мм), ориентация (100); 3 и 4 — после облучения НСЭП с флюенсом 3,3 и 5,2 Дж см^{-2} имп. $^{-1}$ соответственно ($\tau_p = 0,8$ мкс).

несовершенную кристаллическую решетку, о чем свидетельствует высокий выход рассеянных ионов ${}^4\text{He}^{++}$. Воздействие флюенсом $3,3 \text{ Дж см}^{-2} \text{ имп.}^{-1}$ увеличивает их выход, т.е. степень упорядоченности кристаллической решетки уменьшается в результате образования дефектов кристаллического строения (в первую очередь, дефектов межузельного типа). Соответствующая этому режиму кривая имеет два участка различающихся наклоном и, естественно, содержанием дефектов [63]. Кроме поверхностного пика нарушений на участке $50-200 \text{ нм}$, наблюдалось снижение кристаллическости, связанное как с образованием скоплений из межузельных атомов и петель, так и формированием дислокаций. Аналогичное поведение спектра в виде "выедания" наблюдалось в [65] и объяснялось формированием краевых и винтовых дислокаций. В глубине модифицированного слоя (за счет расплавления), начиная с 200 нм , формировался участок с примерно постоянной концентрацией дефектов. При $\Phi > 3,3 \text{ Дж см}^{-2} \text{ имп.}^{-1}$ выход обратно рассеянных ионов уменьшался, что свидетельствовало о более высокой упорядоченности кристаллической решетки (или частичном отжиге дефектов по сравнению с режимом $3,3 \text{ Дж см}^{-2} \text{ имп.}^{-1}$).

На рисунке 4 представлены зависимости S -параметра доплеровского уширения аннигиляционных пиков от энергии анализирующего пучка позитронов (или глубины слоя, верхняя шкала) для облученного $\alpha\text{-Fe}$ (значение $S = N(0)/N(10)$, где $N(0)$, $N(10)$ — интенсивности счета в максимуме кривых углового распределения аннигиляционных фотонов при углах 0 и 10 мрад). Облучение в режиме $2,3 \text{ Дж см}^{-2} \text{ имп.}^{-1}$ создавало в результате закалки дефекты вакансационного типа (клUSTERЫ вакансий, дивакансий, тривакансий и т.д.) начиная с глубины 100 нм и далее на всю глубину анализируемого слоя до 1020 нм . Максимальное увеличение S -параметра соответствовало флюенсу $4,2 \text{ Дж см}^{-2} \text{ имп.}^{-1}$ и обусловливалось ростом концентрации точечных дефектов кристаллического строения и появлением дислокаций (результаты измерения времени жизни позитронов и ПЭМ). Увеличение Φ до $5,2 \text{ Дж см}^{-2} \text{ имп.}^{-1}$ приводило к частичному отжигу дефектов по сравнению с режимом

$4,2 \text{ Дж см}^{-2} \text{ имп.}^{-1}$, а S -параметр уменьшался в поверхностном слое глубиной до 250 нм (что коррелировало с результатами РОП/К). Но уже на глубине $\sim 1 \text{ мкм}$ даже при термическом отжиге 800°C оставались дефекты, к которым чувствительны позитроны. Анализ ВИМС этих отожженных образцов показал концентрацию V примерно на порядок большую, чем W и Mo [63]. Поэтому авторы предположили, что позитроны аннигилируют на примесных комплексах из атомов ванадия.

Таким образом, установлено, что модификации в ЗТВ обусловлены изменением зеренной и дислокационной структуры. Высокие скорости нагрева и охлаждения поверхностных слоев с последующими процессами рекристаллизации формируют пространственные слои с различными видами и концентрациями дефектов. В поверхностном слое ($< 1 \text{ мкм}$) дополнительное воздействие термоупругих напряжений формирует как точечные дефекты кристаллического строения, так и их комплексы: кластеры межузельных дефектов, винтовые и краевые дислокации, создающие микроструктуру, улучшающую механические и триботехнические свойства железа [62, 63].

3. Модификации структуры и механических свойств металлов при мощном импульсном ионном облучении

В первых работах авторов [9, 10, 66, 67] экспериментально обнаружено, что в металлах Al, Cu, W, облученных МИП с интенсивностями $\geq 10^8 \text{ Вт см}^{-2}$, наряду с известным повышением микротвердости в приповерхностной области формируется также второй ее максимум на глубинах, существенно превышающих пробег ионов, т.е. проявляется эффект дальнодействия. Поэтому дальнейшей задачей стало изучение влияния закономерностей формирования дефектной структуры на образование и локализацию этого максимума. Облучение проводилось на ускорителе ТОНУС со следующими параметрами: состав пучка $\sim 70\%$ C^+ , $\sim 30\%$ H^+ ; энергия ионов в спектре $0,2-0,6 \text{ МэВ}$; длительность импульса $\tau_p = 40-100 \text{ нс}$; плотность тока на поверхности мишени $j = 20-250 \text{ А см}^{-2}$, а также на ускорителе ВЕРА (50% H^+ , 50% C^+ ; $0,5 \text{ МэВ}$; 100 нс ; $100-2500 \text{ А см}^{-2}$). Так как при $j > 100 \text{ А см}^{-2} \tau_p$ не изменялась (100 нс), то $\Phi \sim j$. При расчете поглощенной дозы учитывались линейные потери ионов по глубине [68] и их процентное содержание в пучке. Ее распределение в $\alpha\text{-Fe}$ представлено на рис. 5. Глубина облученной области не превышала 2 мкм .

3.1. Дефектообразование в облученном $\alpha\text{-Fe}$ и его влияние на микротвердость

В таблице 1 приведены времена жизни позитронов τ , концентрации точечных дефектов, плотность дислокаций и микротвердость, измеренные в поверхностном ($< 0,5 \text{ мкм}$) слое $\alpha\text{-Fe}$, облученном одиночными импульсами МИП. Все спектры для τ были разложены на две компоненты [69]. В исходном (отожженном) образце $\tau = 114 \pm 2 \text{ пс}$, что близко к данным [64], где в бездефектном $\alpha\text{-Fe}$ значение $\tau_1 = 110 \pm 2 \text{ пс}$, а позитроны аннигилируют, в основном, с электронами $3d^64s^2$ [70]. При $j > 100 \text{ А см}^{-2}$ на поверхности образцов происходит плавление, испарение и сублимация, вызывающие термомеханические напряжения. Их оценки по модели [71]

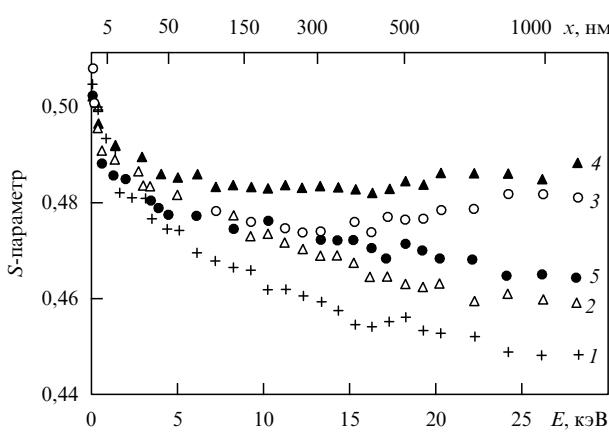


Рис. 4. Зависимости S -параметра от энергии позитронов для предварительно отожженных при различной температуре образцов $\alpha\text{-Fe}$ после облучения НСЭП в различных режимах: 1 — 910°C , до облучения; 2 — 910°C , $2,3 \text{ Дж см}^{-2} \text{ имп.}^{-1}$; 3 — 840°C , $2,3 \text{ Дж см}^{-2} \text{ имп.}^{-1}$; 4 — 910°C , $4,2 \text{ Дж см}^{-2} \text{ имп.}^{-1}$; 5 — 840°C , $4,2 \text{ Дж см}^{-2} \text{ имп.}^{-1}$.

Таблица 1. Значения времени жизни позитронов, концентрации точечных дефектов n_i , плотности дислокаций n_d и микротвердости H в поверхностном слое α -Fe (< 0,5 мкм), облученном одиночными импульсными МИП

$j, \text{ A cm}^{-2}$	$\tau_1, \text{ нс}$	$I_1, \%$	$\tau_2, \text{ нс}$	$I_2, \%$	$H, \text{ МПа}$	$n_i, 10^{18} \text{ см}^{-3}$	$n_d, 10^9 \text{ см}^{-2}$
—	112	100	—	—	760 ± 20	—	0,5
60	112 ± 1	88,2 ± 2,7	193 ± 10	11,8 ± 2,7	880 ± 35	0,136	2,7
150	109 ± 2	76,4 ± 3,0	192 ± 2	23,6 ± 3,0	920 ± 35	0,285	4,0
250	108 ± 2	72,3 ± 3,7	193 ± 4	27,7 ± 3,7	935 ± 30	0,324	4,9
600	108 ± 2	64,6 ± 3,0	191 ± 4	35,4 ± 3,0	1120 ± 65	0,479	9,7
1000	109 ± 1	60,2 ± 2,8	192 ± 2	39,8 ± 2,8	1210 ± 60	0,485	11,05
1500	108 ± 3	52,7 ± 3,0	195 ± 3	47,3 ± 3,0	1230 ± 70	0,686	11,15
2000	112 ± 2	75,6 ± 2,6	221 ± 3	24,4 ± 2,6	1280 ± 65	0,452	—
2500	116 ± 3	70,5 ± 2,1	222 ± 4	29,5 ± 2,1	1350 ± 60	0,377	—

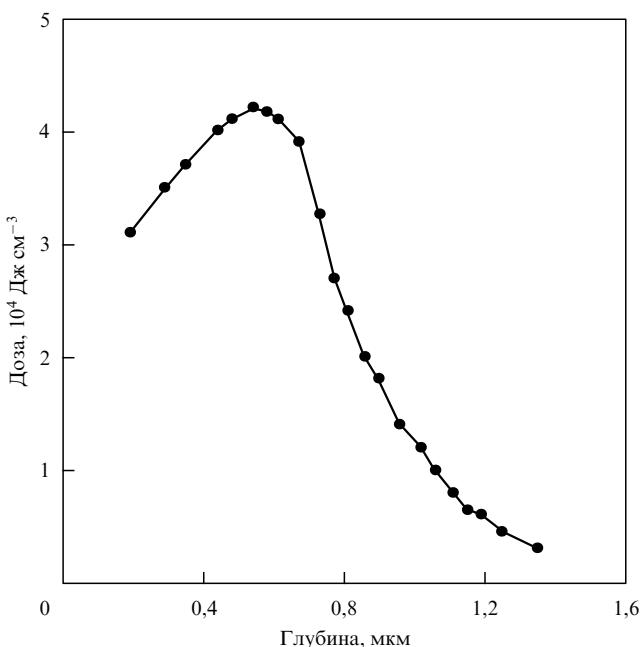


Рис. 5. Распределение поглощенной дозы в мишени α -Fe, облученной МИП ($\sim 70\% \text{ C}^+$, $\sim 30\% \text{ H}^+$; 0,4 МэВ; 100 нс; $3,3 \text{ Дж см}^{-2} \text{ имп.}^{-1}$).

дают значения 10^8 – 10^{10} Па, что достаточно для протекания пластической деформации.

Измерения импульса отдачи с помощью гравитационного маятника и апериодических датчиков вместе с определением весовым методом уноса массы мишени дали амплитуды ударной волны (УВ) от 2 до 14 ГПа в зависимости от флюенса [66]. В ряде работ, приведенных в обзорах [72, 73], экспериментально установлено, что такие УВ вызывают интенсивное дефектообразование. Действительно, ЭПА анализ и электронно-микроскопические наблюдения показали формирование структур с высокой плотностью дислокаций, дислокационных петель, кластеров вакансий и их комплексов. Позитроны эффективно захватываются вакансионными кластерами, преимущественно дивакансиями, с временем жизни $\tau_2 = 192 \pm 3$ пс [64]. С увеличением j наблюдается рост скорости захвата позитронов в одноимпульсном режиме облучения, и изменяются размеры вакансионных кластеров. При $j = 2500 \text{ A cm}^{-2}$ позитроны захватываются дефектами с $\tau_2 = 224 \pm 5$ пс, что согласно [64] соответствует тривакансиям. Кроме того, значение $\tau_1 = 116$ пс превышает время жизни позитронов, аннигилирующих в объеме (108 пс) и включает в себя время жизни позитронов, локализованных на дислокациях, которые по сравнению с вакансиями и кластерами являются более

"мелкими" ловушками для них [74]. Значение $\tau'_2 = 165 \pm 2$ пс соответствует позитронам, захваченным дислокациями, что хорошо согласуется с известными данными [70].

До облучения дислокационная структура в α -Fe представлена единичными хаотически распределенными дислокациями [69, 75]. После облучения в приповерхностном слое формируется дислокационная структура, которая неоднородна в сечениях, перпендикулярных и параллельных облученной поверхности, и изменяется от однородного распределения дислокаций до сложных дислокационных переплетений. При $j > 200 \text{ A cm}^{-2}$ происходит ее существенная перестройка: наблюдается стадия образования дислокационных ячеек (ячеистая структура). Результаты детальных электронно-микроскопических наблюдений приведены в [69]. В приповерхностном слое (< 5 мкм) в структуре содержатся индивидуальные, равномерно распределенные дислокации. У облученной поверхности их средняя плотность достигает $3,6 \times 10^9 \text{ см}^{-2}$, на глубине 5 мкм — $2,2 \times 10^9 \text{ см}^{-2}$. На глубине 10 мкм дислокационная структура становится неоднородной, наблюдаются области с индивидуальными дислокациями и области с сетчатой дислокационной структурой. Существенные качественные изменения начинаются с глубины 30 мкм, где она становится весьма неоднородной. Наряду с хаотической дислокационной структурой, представленной отдельными дислокациями и дислокационными переплетениями, появляются малоугловые границы, которые изменяются от дислокационных сеток с углом разориентации $\sim 1^\circ$ до границ с углом разориентации 5 – 7° , когда отдельные дислокации уже не разрешаются на электронно-микроскопических изображениях. Начиная с глубины 50 мкм наблюдаются области с полигонизованной структурой, когда малоугловые границы группируются с образованием протяженных фрагментов, простирающихся через все исходное зерно поликристалла. Плотности дислокаций для каждой структурной составляющей на разных глубинах приведены в таблице 2. Таким образом, если рассматривать структуру всего модифицированного слоя начиная с поверхности, то можно выделить весь спектр точечных и плоскостных дефектов, распределенных неравномерно по глубине.

В широком интервале плотностей тока $j = 60$ – 2500 A cm^{-2} , которым соответствует изменение флюенса примерно в 40 раз, получены зависимости средней скалярной плотности дислокаций $n_d(j)$ и микротвердости $H(j)$ в тонком поверхностном слое (< 0,5 мкм) α -Fe (рис. 6). Значение n_d при $j = 2500 \text{ A cm}^{-2}$ увеличилось относительно исходного ($5 \times 10^8 \text{ см}^{-2}$) примерно в 20 раз, а микротвердость возросла вдвое (исходная H соста-

Таблица 2. Величины плотности дислокаций для разных типов дислокационных структур в α -Fe, облученном МИП (100 нс, 5,5 Дж см^{-2} имп. $^{-1}$)

Глубина слоя, мкм	Плотность дислокаций в областях			
	с индивидуальными дислокациями, 10^9 см^{-2}	с сетчатой структурой, 10^9 см^{-2}	с малоугловыми границами с разориентацией $\sim 1^\circ$, 10^9 см^{-2}	с полигонизированной структурой, 10^9 см^{-2}
0	1,5	—	—	—
5	1,8	—	—	—
10	2,7	3,8	—	—
30	1,6	—	6	—
50	3,9	1,5	6	—
70	6,2	3,6	6	—
90	2,5	4,2	6	3,9
120	0,8	2,0	—	—

вляла ~ 700 МПа). Характерна жесткая корреляция между распределениями $n_d(j)$ и $H(j)$. Полученные для двух режимов облучения (150 и 400 А см^{-2}) распределения $n_d(x)$ и $H(x)$ по глубине модифицированного слоя

α -Fe также коррелировали между собой и имели два ярко выраженных максимума (рис. 7). Первый расположен около поверхности и связан с воздействием термомеханических напряжений [71, 76]. Наблюдаемые небольшие его смещения с ростом j ближе к поверхности, по-видимому, связаны в первую очередь с испарением части поверхностного слоя. Поэтому начиная с некоторого порогового значения j толщина расплавленного слоя будет уменьшаться за счет испарения и аблации, и тогда фазовая граница жидкость – твердое тело, где градиент термомеханических напряжений и плотность дислокаций максимальны, будет локализоваться ближе к поверхности.

Другой, более протяженный, максимум при $j = 400 \text{ А см}^{-2}$ формируется на глубине ~ 70 мкм и имеет величину $H \sim 1150$ МПа. При 150 А см^{-2} эти значения составляют ~ 90 мкм и 1080 МПа. С ростом j и Φ повышение абсолютного значения H незначительно, а сдвиг максимумов этих распределений ближе к поверхности связан с особенностями формирования фронта УВ, которые будут рассмотрены в разделе 3.4. Глубина модифицированного слоя с повышенными значениями плотности дислокаций и микротвердости достигает до 200 мкм при глубине облучения ~ 1 мкм (см. рис. 7). Прослеживается определенная закономерность смещения второго максимума H и менее заметное смещение первого в зависимости от режимов облучения. Дислокационная структура определяет упрочнение.

Детальный анализ был проведен с малым шагом низкоэнергетическим пучком позитронов ($0,2$ – 30 кэВ) и методом POP/K в слое < 1 мкм, подвергнутом плавлению и частичному испарению при облучении [69, 77]. В результате закалки из жидкого состояния в нем образуется высокая концентрация кластеров вакансий и дислокаций, о чем свидетельствует увеличение S -параметра по сравнению с исходным значением. В слое, где формируются максимальные термомеханические напряжения (граница жидкой и твердой фаз), создается высокая плотность дислокаций ($6,5 \times 10^9 \text{ см}^{-2}$) и значительные концентрации кластеров вакансий (5×10^{17} – 10^{18} см^{-3}). Данные POP/K показывают существенное повышение концентрации межузельных атомов для

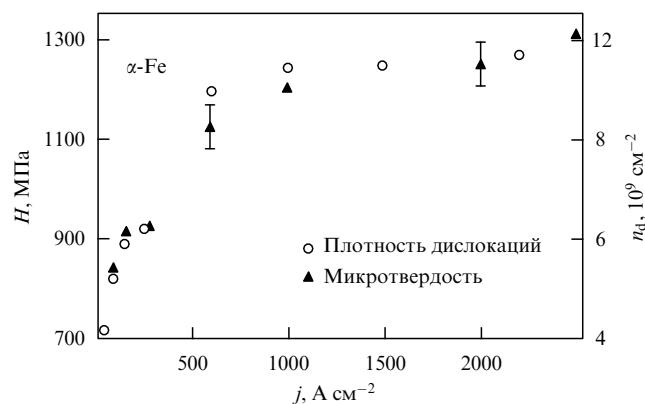


Рис. 6. Зависимости средней скалярной плотности дислокаций n_d и микротвердости H в поверхностном ($< 0,5$ мкм) слое α -Fe от плотности тока МИП j .

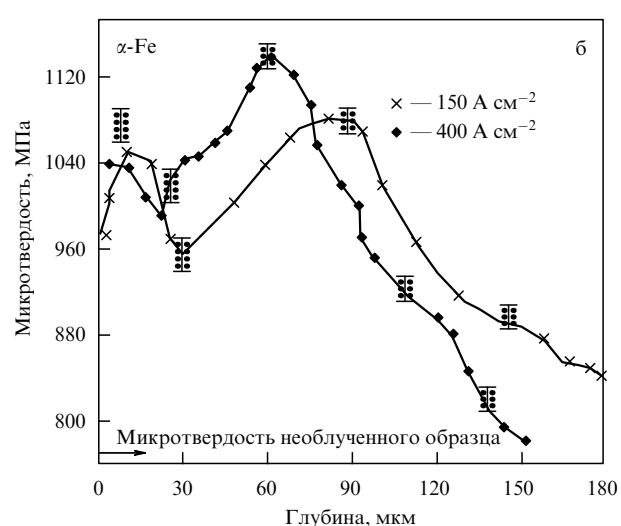


Рис. 7. Распределение средней скалярной плотности дислокаций (а) и микротвердости (б) по глубине модифицированного слоя α -Fe, облученного МИП в различных режимах.

направлений [100] и [001] по сравнению с исходным ориентированным кристаллом с большим зерном (2–4 мм), причем их концентрация максимальна в направлении [100]. Незначительные изменения в концентрациях углерода и хрома в приповерхностной области (до 7 мкм) после облучения показали, что карбидные и оксидные слои не формировались [69]. Согласие результатов анализа электронно-микроскопических наблюдений, РОП/К, ЭПА и ВИМС с фиксируемыми изменениями микротвердости подтверждает предлагаемый механизм дислокационного упрочнения поверхностного слоя α -Fe. Сложнее ситуация с объяснением эффектов дальнодействия. Для установления их природы нами выполнены эксперименты, описанные в разделах 3.2 и 3.3.

3.2. Анализ остаточных деформационных состояний

Так как формирование упрочненных слоев в металлах под действием МИП обусловлено определенным пространственным распределением структурных превращений, то ему, очевидно, будут отвечать соответствующие остаточные деформационные состояния. Для их анализа разработана новая методика [69, 78], включающая неразрушающий метод ядер отдачи, применяемый для получения распределения водорода по глубине [79]. Образцы монокристалла свинца чистотой 99,98 % облучались МИП (5,5 Дж см⁻² имп.⁻¹). Распределение микротвердости $H(x)$ было одинаковым по глубине для необлученных образцов (рис. 8а), а у облученных наблюдалось два максимума. Затем все образцы насыщались водородом. Водород не вступает в химические соединения со свинцом и не образует с ним связанных состояний, что обусловило выбор свинца в качестве объекта исследования. Степень насыщения свинца водородом определяется концентрацией водорода n_H на заданной глубине. Она

была одинаковой для необлученных образцов ($n_{H0} \sim 5,2$ ат. %). После облучения распределение $n_H(x)$ становится резко неравномерным, в нем можно выделить четыре слоя (рис. 8б): L1, L3 — области сжатия, где насыщение водородом было малым ($n_H < n_{H0}$) и L2, L4 — области растяжения, куда водород заходил легко ($n_H > n_{H0}$). Очевидно, это насыщение хорошее в областях с повышенным содержанием вакансий $n_v(x)$ и малым межузельными атомов $n_i(x)$, что характерно для областей растяжения. Для областей сжатия ситуация обратная. Тогда величину напряжения σ на глубине x и степень деформации ε можно оценить как [69, 78]

$$\varepsilon \sim \sigma \sim \ln \left| \frac{n_H(x)}{n_{H0}} \right| \sim \ln \left| \frac{n_i(x)}{n_{i0}} \right| \sim \ln \left| \frac{n_v(x)}{n_{v0}} \right|, \quad (3.1)$$

где $n_{i0}(x)$, $n_{v0}(x)$, $n_{H0}(x)$ и $n_i(x)$, $n_v(x)$, $n_H(x)$ — концентрации соответственно межузельных атомов, вакансий и водорода до и после облучения. С помощью способа диагностики дефектов по кривым углового распределения аннигиляционных фотонов (УРАФ) [80] определялось значение f -параметра на различных глубинах:

$$f = \left| \frac{N(0) - N_\Phi}{N(10) - N_\Phi} \right|, \quad (3.2)$$

где $N(0)$, $N(10)$ — интенсивности счета в максимуме кривых УРАФ при углах 0 и 10 мрад, N_Φ — интенсивность счета фона. До облучения оно было одинаковым (рис. 8в). После облучения форма кривых УРАФ изменяется, а соответствующая зависимость f -параметра от глубины имеет сложный характер, что связано с его высокой чувствительностью к концентрациям точечных дефектов, дислокаций и их скоплениям — порам, кластерам и др. Видно соответствие всех трех видов распределений. Так как свинец легкоплавкий металл, то после облучения в приповерхностной области наблюдались следы плавления, что затрудняло получение здесь достоверных данных о значениях H , n_H и f -параметра. Отметим, что для свинца, в отличие от других металлов, величина второго пика микротвердости близка к его значению в приповерхностной области, и он локализован в мишени на существенно больших глубинах (160–200 мкм). Это связано с его механическими и теплофизическими свойствами, определяющими особенности распространения УВ. Более низким температурам плавления и кипения свинца при том же флюенсе, что и для других металлов, соответствуют более высокие величины массы выброса материала и его скорости. Эти факторы вызывают рост импульса отдачи в мишень, который создает большее сжатие материала и увеличивает начальную амплитуду УВ.

После облучения образуются четыре слоя деформаций (см. рис. 8): L1 (до 80 мкм) — область сжатия, характеризуется повышенной концентрацией межузельных атомов и дислокаций и соответствует первому пику микротвердости; L2 (80–130 мкм) — область растяжения, где большая концентрация вакансий, дислокационных петель вакансационного типа; L3 (130–250 мкм) — область сжатия с повышенной концентрацией межузельных атомов, дислокаций и их скоплений (область локализации второго пика микротвердости); L4 (> 250 мкм) — область растяжения, где превращения затухают, а структура материала приближается к исходной. По

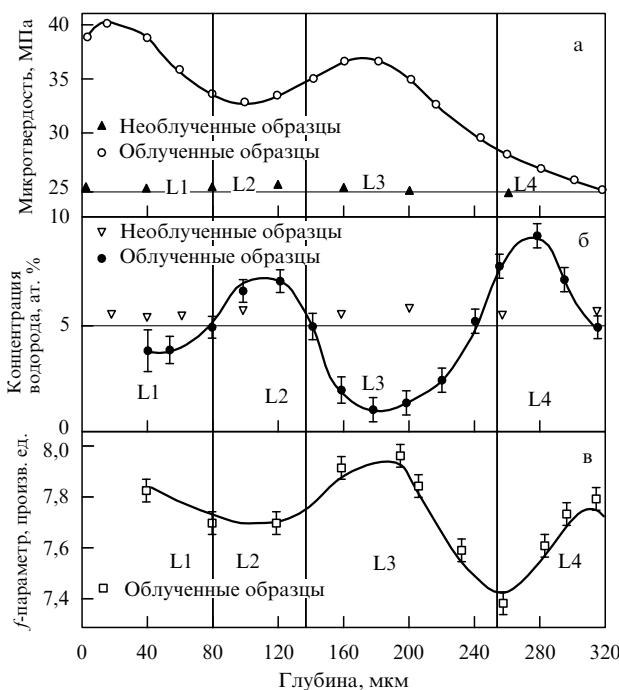


Рис. 8. Распределение микротвердости, концентрации водорода и f -параметра по глубине мишени Pb, облученной МИП (0,2–0,6 МэВ, 100 нс, 5,54 Дж см⁻² имп.⁻¹).

отмеченной причине данные исследования проведены для Pb. Возникает вопрос о возможности распространения полученных результатов на другие металлы, так как Pb имеет специфические механические (малая микротвердость, высокая пластичность) и теплофизические свойства. Для всех металлов, включая Pb, важны следующие три результата:

- 1) распределение микротвердости по глубине облученной мишени имеет два пика, несколько отличающихся количественными параметрами (см. рис. 7). При одних и тех же режимах облучения это свидетельствует о действии одного механизма образования упрочненных слоев;

- 2) ЭПА-анализ показывает один и тот же характер распределения структурно-чувствительных дефектов по глубине;

- 3) наблюдается корреляция между двумя видами распределений: $H(x)$ и $f(x)$, а для Pb — между тремя, включая $n_H(x)$. Это указывает на возможность обобщения сформулированных выводов для всех металлов.

3.3. Влияние различных видов радиации на глубинное упрочнение

Радиационное облучение в зависимости от его вида, энергии частиц, интенсивности и флюенса по-разному влияет на упрочнение металлов. Следовательно, при сравнении результатов различных воздействий можно выявить главный фактор, определяющий глубинное упрочнение. С этой целью был выполнен следующий эксперимент [69]. Из одной заготовки инструментальной стали Р6М5 (состав в ат. %: 5,3 W, 4 Cr, 1,5 Mo, 1 V, 0,001 C, остальное Fe) были сделаны четыре партии образцов. Первая — контрольная — партия не облучалась. Образцы второй были имплантированы ионами C^+ (40–60 кэВ, 40–60 мкА см⁻²), а интегральный флюенс составил $\Phi_i = 1,5 \times 10^{18}$ ион см⁻², или $\sim 1,2 \times 10^4$ Дж см⁻². Третья партия облучалась импульсом мощного рубинового лазера (длина волны 0,694 мкм, 80 нс, $\Phi_l = 5$ Дж см⁻² имп.⁻¹), а четвертая — МИП ($\Phi_m = 5,5$ Дж см⁻² имп.⁻¹). Микротвердость H была одинаковой ($\sim 5,1$ ГПа) по глубине x для необлученных образцов (рис. 9). Интегральные флюенсы всех видов радиации подбирались такими, чтобы после облучения H_1 в приповерхностной области была примерно одна и та

же. После лазерного воздействия и МИП зарегистрированы значения $H_1 \sim 8,5$ ГПа при $x_1 \sim 1$ –2 мкм в первом случае и $H_1 \sim 10,5$ ГПа, $x_1 \sim 2$ –3 мкм — во втором. После ионной имплантации значение H_1 составляло около 8,7 ГПа при $x_1 < 1$ мкм (ошибка в определении H для всех партий не превышала 5 %).

Резкое различие в распределениях $H(x)$ наблюдалось во всех четырех случаях. Для необлученных образцов оно было однородным. Для имплантированных образцов H резко уменьшалась и при $x > 3$ мкм была равна начальной. После лазерного облучения наблюдался второй максимум $H_2 = H_z \sim 7,5$ ГПа при $x_2 = z \sim (35$ – $45)$ мкм с шириной упрочненной области $\Delta x = 45$ – $35 = 10$ мкм. Похожая картина имела место в результате воздействия МИП, но величина второго пика была выше, $H_z \sim 8,1$ ГПа, он формировался на больших глубинах $z \sim 60$ – 80 мкм и имел большую протяженность $\Delta x \sim 20$ мкм.

Механизм упрочнения сталей после имплантации ионами углерода связан, в основном, с образованием карбидных фаз на поверхности [43, 81]. Глубина модифицированного слоя зависит от пробега ионов данных энергий (<0,2 мкм). В случае лазерного и ионного импульсных облучений упрочнение на больших глубинах определяется воздействием УВ, описанным в разделе 3.4. Тот факт, что при лазерном облучении второй пик локализован ближе к поверхности, связан с более крутым и узким начальным профилем поглощенной энергии [4], при котором глубина проникновения излучения $\sim 0,1$ мкм, что на порядок меньше, чем при воздействии МИП (см. рис. 5). Отметим, что при облучении α -Fe НСЭП, когда генерировалась только упругая волна малой амплитуды (<0,1 ГПа), упрочнение на больших глубинах не наблюдалось [62, 63]. Таким образом, данный эксперимент подтверждает определяющую роль ударной волны в глубинном упрочнении.

Оценим энерговклады этих воздействий в упрочнение. Близкие по значениям увеличения микротвердости получены при одинаковых флюенсах лазерного и МИП облучений. Энерговклад в упрочнение при ионной имплантации, по крайней мере, был на три порядка меньше: $\Phi_i/\Phi_l \approx \Phi_i/\Phi_m \sim 10^3$, а эффект достигался только в приповерхностном слое. Такой тонкий слой быстро истирается при эксплуатационных механических нагрузках на поверхности стальных изделий, например у резцов, сверл, фрез и др. С целью повышения износостойкости перспективно применение мощных лазерных и ионных пучков, создающих глубинное упрочнение. В этом случае слой материала L2, находящийся между двумя максимумами, для которого характерна остаточная деформация растяжения (см. рис. 8), играет роль демпфера, особенно благоприятного для повышения прочности материала при ударных воздействиях. Это может быть применено в разработке броней, защитных экранов и др. Предпочтительнее использование МИП, чем лазера, так как общий эффект поверхностного и глубинного упрочнения выше при одинаковых флюенсах, а КПД ускорителей МИП на порядки больше, чем у лазеров.

Детальное исследование влияния режимов облучения МИП на характеристики глубинного упрочнения стали Р6М5 проведено в [69]. Получены следующие эмпирические зависимости величины второго пика микротвердости H_z (ГПа) и глубины его формирования z (мкм) от

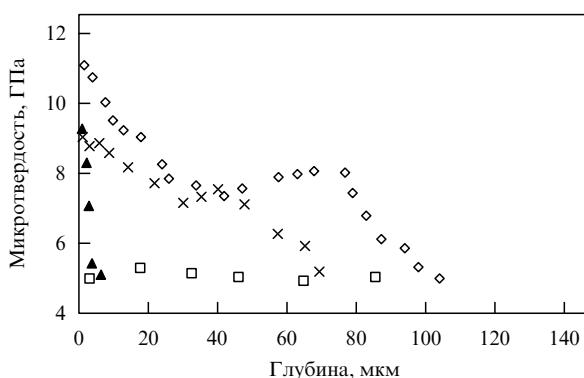


Рис. 9. Распределение микротвердости по глубине в стали Р6М5 после облучения различными видами радиации: \square — исходный образец; \blacktriangle — имплантация C^+ ; \times — облучение лазером; \diamond — облучение МИП.

плотности тока j :

$$H_z = 685 \left(\frac{j}{100} \right)^{0.43}, \quad (3.3)$$

$$z = \frac{150}{(j/100)^{0.95}}. \quad (3.4)$$

Эти результаты согласуются с данными для α -Fe (см. рис. 7): с ростом j и флюенса наблюдается увеличение H_z и смещение z ближе к облученной поверхности. Отметим, что распределение $H(x)$ коррелирует с соответствующим распределением износстойкости облученных образцов стали по глубине при трении по абразиву. Подобная корреляция наблюдалась также для меди [10] и бериллия [69].

3.4. Кинетическая модель упрочнения

Следующие результаты дают экспериментальное и теоретическое обоснование модели глубинного упрочнения:

1) эффект обнаружен для многих металлов, отличающихся друг от друга по структуре, механическим и теплофизическим свойствам: Al, Cu, W, α -Fe, Be, Pb, а также для стали Р6М5;

2) эффект имеет нелинейный характер и происходит при флюенсах и интенсивностях облучения, превышающих некоторые критические (пороговые) значения. Он устойчив и отчетливо выражен — в распределении микротвердости всегда имеются два близких по величине пика на совершенно различных глубинах, которым отвечают соответствующие распределения износстойкости;

3) при различных режимах облучения наблюдается жесткая корреляция между средней скалярной плотностью дислокаций и микротвердостью как в приповерхностной области, так и в глубине;

4) пространственным распределением микротвердости отвечает один и тот же характер распределения остаточных деформационных состояний во всех металлах;

5) этот эффект дальнодействия проявляется только при высокointенсивных импульсных радиационных воздействиях, и основной вклад в него вносит ударная волна, а упругая волна такого эффекта не производит.

Оценим толщину прогретого слоя за время импульса облучения ($\tau_p \sim 10^{-7}$ с): $x_h \sim (\chi \tau_p)^{0.5}$, где χ — температуропроводность ($\chi = 0.8-2 \text{ м}^2 \text{ с}^{-1}$ для большинства металлов). Значение $x_h \sim 1-2 \text{ мкм}$ (что соответствует пробегам протонов средних энергий), поэтому теплоотводом в мишень за время импульса и потерями на излучение можно пренебречь. Тогда практически мгновенный нагрев металла в приповерхностной области вызывает: а) генерацию термонапряжений в твердой фазе — термоудар; б) плавление и выброс материала со стороны облученной поверхности. Возникающий импульс отдачи вызывает дополнительное сжатие. Оба процесса создают в мишени давление P , равное

$$P = P_1 + P_2 = \Gamma_1 W_1 + \Gamma_2 W_2, \quad (3.5)$$

$$W = W_1 + W_2, \quad (3.6)$$

где P_1, P_2 — давления, возникающие при первом и втором процессах; W_1, W_2 — составляющие плотности

полной поглощенной энергии (дозы) W , вызывающие эти давления; Γ_1, Γ_2 — параметры Грюнайзена для твердой фазы и плазмы при абляции. Как показано экспериментально, при облучении металлов мощными импульсными радиационными пучками, давление P_2 существенно при интенсивностях, на порядки превосходящих достижимые в наших экспериментах [4, 82]. Тогда начальный профиль давления $P(x, t=0)$ определяется распределением поглощенной дозы $W(x)$:

$$P(x, t=0) = P_1 = \alpha_1 \Gamma_1 W(x). \quad (3.7)$$

По прямым измерениям амплитуды импульса сжатия УВ получена оценка $\alpha_1 = 0.1$, т.е. только $\sim 10\%$ энергии пучка идет на создание УВ [66]. Покажем, что генерируемая в этом случае волна действительно является ударной. Критерий образования УВ, полученный при лазерном облучении [83], справедлив для любых тепловых воздействий концентрированных импульсных потоков энергии на поглотители и имеет вид

$$\frac{Q}{n \tau_p^2} > \frac{C_L^4 \rho_0}{\mu_\lambda}, \quad (3.8)$$

где Q — полная поглощенная энергия импульса с длительностью τ_p , n — число пиков, C_L — скорость продольного звука, ρ_0 — плотность, μ_λ — коэффициент поглощения излучения вещества до облучения. При воздействии МИП $Q = IS\tau_p$, $\mu_\lambda = R_0^{-1}$, $n = 1$, и критерий (3.8) принимает вид

$$\frac{IS}{\tau_p} > C_L^4 \rho_0 R_0, \quad (3.9)$$

где I — интенсивность, S — площадь облучения, R_0 — пробег ионов в материале. При используемых режимах облучения $I \sim 10^{12} \text{ Вт м}^{-2}$, $\tau_p \sim 10^{-7} \text{ с}$, $S \sim 10^{-4} \text{ м}^2$ для железа ($C_L = 5 \times 10^3 \text{ м с}^{-1}$, $\rho_0 = 7.9 \times 10^3 \text{ кг м}^{-3}$, $R_0 \sim \sim 1 \text{ мкм}$) получим $IS/\tau_p \sim 10^{15} \text{ кг м}^2 \text{ с}^{-4}$ и $C_L^4 \rho_0 R_0 \sim \sim 10^{12} \text{ кг м}^2 \text{ с}^{-4}$. Таким образом, критерий образования УВ выполняется, а ее начальное давление составляет несколько ГПа, т.е. волна является слабой (< 10 ГПа) [69, 77].

Принципиальный момент в предлагаемом механизме глубинного упрочнения следующий. УВ, генерируемая МИП, по своим параметрам близка к лазерной УВ (ЛУВ). Как установлено экспериментально [41, 42, 83–87], по характеристикам ЛУВ резко отличается от волн, создаваемых взрывом или высокоскоростным соударением: длительность ее фазы сжатия на три порядка меньше, а диапазон давлений шире — от акустических давлений до 10^{14} Па. Поэтому ее воздействие на твердые тела на атомарном уровне в принципе отличается от воздействия механической волны напряжений и в большей степени определяется не амплитудой давления, а его пространственным градиентом. С этим обстоятельством связан ряд новых эффектов, регистрируемых по изменению механических и электрических свойств металлов и полупроводников, вызванному ЛУВ. Согласно [87], ЛУВ представляет собой поток неравновесных фононов. При их взаимодействии с нерегулярностями решетки центр рассеяния получает импульс и образует дефект. При этом передача импульса от возбужденных атомов к невозбужденным проявляется не как коллективное воздействие, а

скорее, как индивидуальное. ЛУВ одномерно деформирует решетку, создавая поперечные смещения атомов. Поэтому энергетические пороги образования дефектов в ЛУВ примерно на два порядка ниже, чем соответствующие обычному нагружению при той же плотности введенной энергии. В результате роль примесей, дефектов и флуктуаций возрастает. Этот вывод подтвержден в экспериментах, где обнаружено локальное избирательное действие ЛУВ на тяжелые легирующие примеси бора и железа в германии и кремнии [86].

Распространение УВ в необлученную область вызывает на макроскопическом уровне сжатие металла, способствующее измельчению его зерен, что повышает его микротвердость с ростом давления по закону $H \sim P^{0.5}$ [73, 88]. Давление волн по глубине падает, что сначала вызывает уменьшение H (см. рис. 7–9). Однако фронт УВ становится круче (это подтверждено далее нашими расчетами). Начальное значение градиента давления определяется по исходному распределению $P(x, t = 0)$ (см. (3.7)), а затем оно рассчитывается по изменяющемуся профилю давления в самой волне. Градиент давления возрастает, достигая максимума в области формирования фронта УВ (ФУВ). Наиболее интенсивная генерация как собственных, так и примесных дефектов, соответствующих максимуму пространственных нарушений, происходит в этой области. В металлах типичными являются френкелевские пары дефектов — межзельные атомы и ваканси. Межзельные атомы существенно подвижнее вакансий, поэтому их сток к дислокациям закрепляет вакансию, снижая подвижность последних. В результате предел текучести и микротвердость возрастают. Ширина фронта УВ при давлениях ~ 10 ГПа составляет тысячи и сотни тысяч межатомных расстояний [72, 89]. Тогда появление второго максимума микротвердости на больших глубинах вполне согласуется с такой трактовкой и соответствует реальному процессу.

Импульс в УВ получают как атомы матрицы, так и дефекты (центры рассеяния). Но последние из-за отличия по массе от атомов основного элемента и вследствие локальных микроискажений приобретают дополнительный импульс ΔP [87]:

$$\Delta P \sim \left(\frac{\Delta A}{A} \right)^2 + \left(\frac{\Delta \sigma}{\sigma} \right)^2, \quad (3.10)$$

где ΔA и $\Delta \sigma$ — локальные изменения атомного веса и модуля упругости, вносимые центром рассеяния (A , σ относятся к матрице). Так как диаметр пятна облучения существенно превосходит пробег ионов, то УВ является плоской, и для нахождения ее профиля использовались одномерные дифференциальные уравнения для законов сохранения массы и момента, а также уравнение состояния. Решение уравнений проводилось методом сеток по алгоритму [90]. Область формирования ФУВ определялась по значению глубины $x = z$, при котором производная $(\partial P / \partial x)_{x=z}$ имеет максимум. Расчетные распределения градиента давления, определяемые профилем давления в самой волне, даны на рис. 10.

Кинетические уравнения в этой области учитывают генерацию френкелевских пар дефектов, их рекомбинацию и сток межзельных атомов к дислокациям [69, 90]. Полагая, что увеличение микротвердости H_z линейно зависит от числа дефектов, стекающих на дислокации,

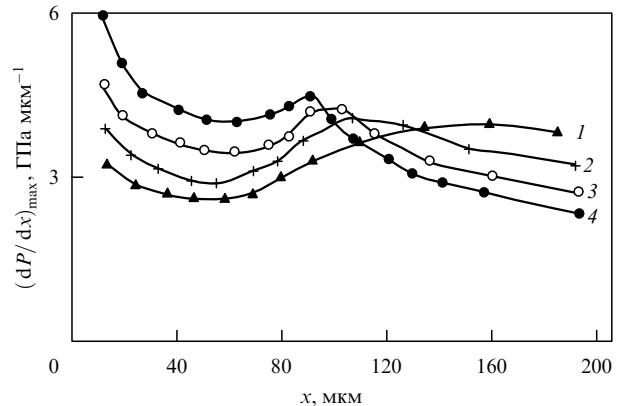


Рис. 10. Распределение градиента давления ударной волны по глубине x мишени железа, облученной МИП при различных флюенсах: 1 — 3,3; 2 — 3,5; 3 — 4,4; 4 — 5,5 Дж см⁻² имп.⁻¹.

получим

$$H_z = K_1 K_2 \sqrt{j}, \quad (3.11)$$

где коэффициент K_1 определяется свойствами и структурой материала, а коэффициент K_2 зависит от ударноволнового профиля УВ; j — плотность тока пучка на мишени. Явные выражения для K_1 и K_2 приведены в [69]. Величина $H_z \sim j^{0.5}$, что хорошо согласуется с полученной экспериментальной зависимостью $H_z \sim j^{0.43}$ (см. (3.3)). Положение H_z определяется областью локализации максимального значения градиента давления УВ (см. рис. 10). С ростом плотности тока, а следовательно, и флюенса облучения поглощенная доза и соответствующее начальное давление УВ возрастают. Согласно общей теории распространения ударных волн в твердых телах [91], это приводит к более быстрому формированию ФУВ на меньших глубинах. Действительно, видно, что все зависимости $(\partial P / \partial x)$ имеют максимумы, локализованные на различных глубинах $x = z$, причем большим значениям j соответствуют большие значения $(\partial P / \partial x)_{\text{max}}$ и меньшие значения z , что также хорошо согласуется с экспериментом (см. рис. 10 и формулы (3.3), (3.4)).

Основные выводы раздела следующие:

- 1) в широком интервале интенсивностей облучения МИП показана корреляция между двухмодальными распределениями плотности дислокаций и микротвердости по глубине модифицированного слоя, подтверждающая определяющую роль дислокационной структуры в глубинном упрочнении;
- 2) модифицированный слой имеет четыре области с различным характером остаточных деформационных состояний, соответствующих распределению микротвердости;
- 3) глубинное упрочнение происходит только при интенсивных импульсных радиационных воздействиях, способных генерировать ударную волну;
- 4) МИП дает максимальный энерговклад в этот эффект и формирует наиболее протяженные упрочненные слои, обеспечивающие значительное увеличение износостойкости по сравнению с другими видами облучения;
- 5) предложенная кинетическая модель превращений в поле УВ хорошо согласуется с экспериментальными данными. Полученные закономерности свидетельст-

вуют о возможности прогнозирования или целенаправленного изменения свойств материалов путем выбора определенного режима облучения МИП. Данный эффект лежит в основе нового способа обработки металлов с целью повышения их прочности и износостойкости [92].

Представленные результаты хорошо согласуются с новейшими исследованиями, выполненными в Сандийской национальной лаборатории (Нью-Мексико, США) на ускорителе протонов PHEPP-I (0,8 МэВ, 60 нс, 25 кА) [93]. После облучения конструкционной стали AISI304L (основа Fe, 19 % Cr, 9 % Ni, 0,03 % C) флюенсом 1,6 Дж см⁻² имп.⁻¹ наблюдалось увеличение микротвердости на больших глубинах до 140 мкм при глубине облучения ~ 6 мкм. Микроскопические наблюдения показали резко выраженное двухмодальное распределение плотности дислокаций в облученной титановой мишени на глубинах ~ 30 мкм и ~ 100 мкм (до облучения ее поверхность легировалась тонким слоем платины ~ 2 мкм). Авторы работы констатируют появление эффектов дальнодействия и соответствие их результатов нашим экспериментам.

Такие эффекты отчетливо проявлялись и при воздействии УВ, генерируемой импульсом лазера (0,6–2,5 нс, 120–2050 ГВт см⁻²), на железо; при этом наблюдался значительный рост объемов двойников на глубинах от 50 до 400 мкм [94].

4. Плавление и перемешивание двухслойных металлических систем при облучении низкоэнергетическим сильноточным электронным пучком

Когда поверхность одного материала покрывается тонкой пленкой другого, то кратковременное воздействие высоких температур может вызывать перемешивание их компонентов и перераспределение элементов пленки и подложки с формированием различных соединений дополнительно к явлению отжига. В последнее время МИП и СЭП используются для быстрого жидкофазового перемешивания тонких поверхностных слоев. Его исследование имеет фундаментальное значение для построения неравновесных фазовых диаграмм состояния, так как такое облучение может создавать неравновесные соединения и метастабильные фазы, существование которых запрещено на равновесных диаграммах состояния. Цикл исследований систем, имеющих различную смешиваемость при обычных условиях, а именно, Ag–Fe, Cu–Fe, Al–Fe, Au–Cu, Au–Cu–Mo, Mo–Zn, Fe–Pb, Fe–Si и др., подтверждает это для систем не только с хорошей, но и с весьма ограниченной растворимостью и даже с полным отсутствием растворимости [11, 55, 56, 77, 95–99].

Особый интерес представляет возможность перемешивания материалов с резко различными теплофизическими и термодинамическими свойствами, которое трудно осуществить традиционными способами. Важно изучение модификаций на поверхности железа — первичной основы для сталей и сплавов новой структуры — при его легировании различными элементами. Например, тугоплавкие металлы Та и Мо улучшают механические, теплофизические и антикоррозионные свойства железа. Температуры плавления $T_{\text{пл}}$ для Fe, Та и Мо равны 1537, 2997 и 2617 °С, соответственно, а температура кипения Fe, равная 2872 °С, находится посередине между $T_{\text{пл}}$ для

Mo и Та, что значительно затрудняет их введение в матрицу. Равновесные диаграммы систем Та–Fe и Mo–Fe характеризуются полной взаиморастворимостью компонентов в жидкой фазе и ограниченной растворимостью в твердом состоянии: система Fe–Ta содержит два соединения FeTa и Fe₂Ta с широкой областью гомогенности. Когда концентрация Та равна 42 % ($T = 1550$ °С), эвтектика (Fe₂Ta + FeTa) кристаллизуется, а при 64 % тантала ($T = 1680$ °С) образуется эвтектика (FeTa + Ta). Растворимость Та в γ -Fe составляет < 3 %, а в α -Fe — не более десятых долей ат.-% [100]. Мотивация наших исследований заключалась в изучении возможностей НСЭП для перемешивания таких систем, анализа образующихся элементных и фазовых композитов и их влияния на модифицируемые свойства [69, 101].

При моделировании тепловых режимов для чистого α -Fe [63] и систем Та–Fe, Mo–Fe динамика температурных полей анализировалась посредством численного решения одномерного уравнения теплопроводности с переменными значениями теплоемкости и температуропроводности при наличии теплового источника, задаваемого режимами облучения [102]. Учитывались фазовые переходы, включающие процессы плавления и кристаллизации [103]. На рисунке 11а приведены зависимости положения межфазной границы расплав – твердое тело от времени для системы Та–Fe — тонкая (100 нм) пленка Та на подложке (100 мкм) α -Fe при различных флюенсах Φ . С ростом Φ от 2,3 до 5,2 Дж см⁻² имп.⁻¹ толщина расплавленного слоя железа и время его существования

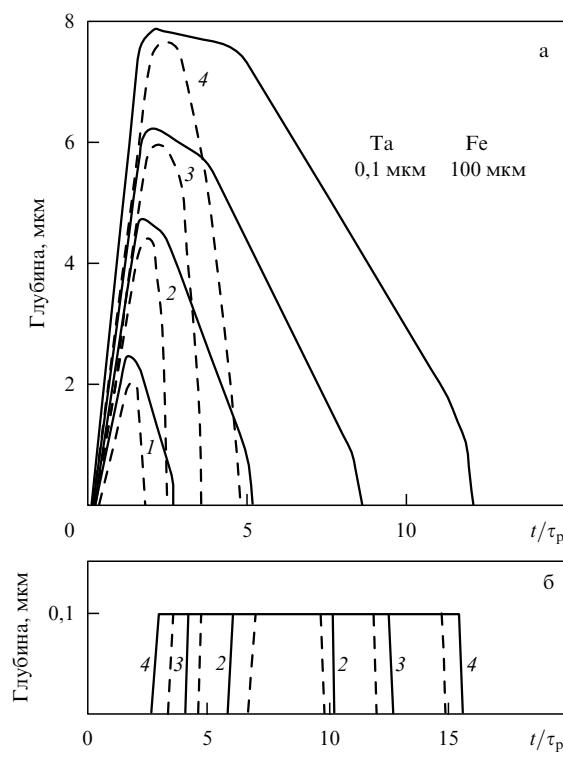


Рис. 11. Зависимости положения межфазной границы в системе Та–Fe от времени при облучении одиночным импульсом НСЭП (6–20 кэВ, 0,8 мкс) при различных флюенсах: 1 — 2,3; 2 — 3,3; 3 — 4,2; 4 — 5,2 Дж см⁻² имп.⁻¹ (а). Влияние флюенса на кинетику плавления пленки тантала (толщина 100 нм). Сплошные линии — slush-состояние твердая + жидкая фаза, штриховые линии — жидкая фаза (б).

увеличиваются в пределах 2,7–7,8 мкм и 2–10 мкс. А при облучении α -Fe такими же флюенсами они изменялись в пределах 0,7–2,5 мкм и 0,5–3 мкс, соответственно [63]. Сплошные линии (рис. 11а) соответствуют участкам, где $T = T_{пл}$, а металл находится в метастабильном двухфазном состоянии (slush-состоянии), возникающим только при импульсном нагреве, когда не полностью введена удельная теплота плавления [104]. На рисунке 11б показано влияние Φ на время существования пленки Та в жидком состоянии. При $\Phi = 2,5 \text{ Дж см}^{-2} \text{ имп.}^{-1}$ она еще не плавится, а толщина расплавленного слоя Fe составляет 2,7 мкм (кривая 1). Одновременное плавление компонентов происходит при $\Phi = 3,3 \text{ Дж см}^{-2} \text{ имп.}^{-1}$ в течение 0,4 мкс. При $\Phi = 5,2 \text{ Дж см}^{-2} \text{ имп.}^{-1}$ это время возрастает до 1 мкс. С ростом Φ максимальная скорость охлаждения расплава на поверхности уменьшается от 10^9 до 10^8 К с^{-1} , а скорость фронта кристаллизации — от 2 до 1 м s^{-1} . При облучении α -Fe эти характеристики составляли 10^{10} – 10^9 К с^{-1} и 2–5 м s^{-1} , соответственно. Таким образом, наличие тугоплавкой пленки существенно (в 4 раза) увеличивает толщину расплавленного слоя Fe и время его жизни, что уменьшает скорость закалки из расплава и замедляет процесс кристаллизации. Тем не менее значения этих характеристик достаточны, чтобы обеспечить эффективный захват примесей границей расплав — твердое тело и значительно предотвратить сегregationation растворенных примесей при перекристаллизации.

На рисунке 12 представлены энергетические спектры POP для системы Та–Fe до и после воздействия НСЭП. Уменьшение интенсивности пика Та, размытие и смещение правого края его спектра влево свидетельствуют о том, что облучение приводит к перемешиванию компонентов при всех значениях Φ , в том числе и при $\Phi =$

$= 2,5 \text{ Дж см}^{-2} \text{ имп.}^{-1}$, когда пленка Та, согласно расчетам (рис. 11б), не должна плавиться. При высоких Φ в спектрах появляются горизонтальные участки, подтверждающие образование слоев толщиной до 100 нм с постоянной концентрацией Та. Уменьшение интенсивности пика Та с ростом Φ указывает на то, что перемешивание сопровождается потерей массы Та, вероятнее всего, из-за ее разбрзгивания перегретыми парами подложки. Результаты электронной оже-спектроскопии (ЭОС) показывают, что исходная пленка содержит помимо Та (около 60 ат.%) значительное количество углерода и кислорода. Максимальная концентрация кислорода наблюдается на границе раздела пленка — подложка, что подтверждает образование окисной пленки Та. После облучения происходит перераспределение элементов пленки и подложки и их хорошее перемешивание, что согласуется с данными РОР. Одновременно увеличивается концентрация кислорода в поверхностном слое толщиной до 50 нм и образуется окисный слой, толщина которого уменьшается с ростом Φ , а глубина перемешанного слоя возрастает до 250 нм. Анализ профилей Та по спектрам РОР и ЭОС показал, что с увеличением Φ концентрация Та сильно уменьшается как на поверхности, так и в глубине, а при высоких $\Phi = 5,5 \text{ Дж см}^{-2} \text{ имп.}^{-1}$ большая часть пленки Та уносится при аблации.

Рассчитанный по уравнению Фика эффективный коэффициент диффузии Та в жидкой фазе составляет $(3\text{--}8) \times 10^{-5} \text{ см}^2 \text{ с}^{-1}$. Эти значения характерны для диффузии в такой фазе [97, 105, 106]. Перемешивание Та и Fe при $\Phi = 2,5 \text{ Дж см}^{-2} \text{ имп.}^{-1}$, когда, согласно расчетам тепловых полей, пленка Та не должна плавиться, авторы объясняют следующими причинами. В расчетах не учитывалось существование в системе Та–Fe эвтектики δ -Fe + Fe_2Ta , которая образуется при 7,9 ат.-% Та и плавится при $T = 1440^\circ\text{C}$ [100], а также наличие в исходной пленке окиси Та, теплопроводность которой намного ниже, чем у Та. Оба этих фактора могут понизить порог плавления до $\Phi = 2,5 \text{ Дж см}^{-2} \text{ имп.}^{-1}$, причем плавление может начинаться не с поверхности, а на границе пленка — подложка.

На рисунке 13 показана морфология поверхности образца до и после облучения [101, 107]. Исходное покрытие неоднородно (рис. 13а). После облучения неоднородность усиливается (рис. 13б). Большая часть поверхности имеет структуру, характерную для эвтектики. Можно выделить три участка T_1 , T_2 и T_3 , отличающиеся по контрасту, причем на долю участков T_1 и T_2 приходится 30 и 50 % общей площади, соответственно. Микрозондовый анализ показал, что темные участки T_1 содержат преимущественно Fe, в светлых участках T_3 превалирует Та, а в промежуточных участках T_2 — смесь этих элементов в сравнимых концентрациях. Следовательно, процесс перемешивания эффективно протекает только в участках T_2 , т.е. на 50 % облучаемой поверхности. По мнению авторов, неоднородность перемешивания связана с неравномерностью самого покрытия как по поверхности, так и по глубине (рис. 13а), а также с выбросом некоторой части покрытия при "взрывном" вскипании подложки (при $\Phi = 5,5 \text{ Дж см}^{-2} \text{ имп.}^{-1}$ температура на поверхности достигает 4000°C).

Наибольший интерес представляют участки T_2 , содержащие частицы нерастворенного Та сферической формы размером 0,3 мкм и частицы интерметаллида

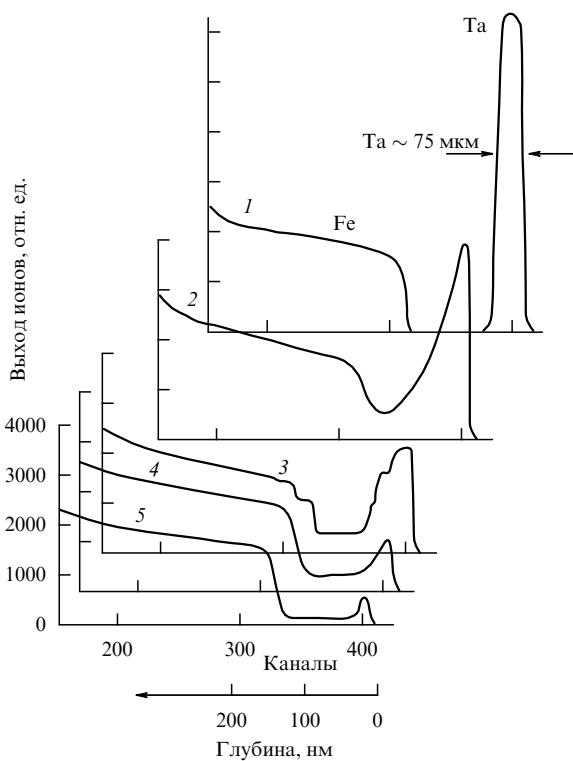


Рис. 12. Энергетические спектры POP ионов ${}^4\text{He}^+$ (1,8 МэВ) для системы Та/Fe до облучения (1) и после воздействия НСЭП: 2 — 2,3; 3 — 3,3; 4 — 4,2; 5 — 5,2 $\text{Дж см}^{-2} \text{ имп.}^{-1}$.

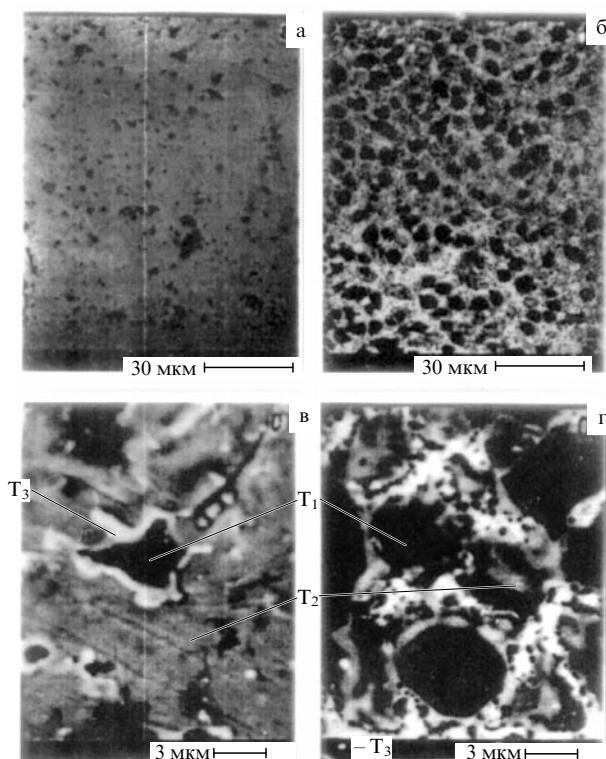


Рис. 13. Морфология поверхности образцов Та/Fe: до облучения в исходном состоянии (а); после облучения НСЭП ($3,5 \text{ Дж см}^{-2}$ имп. $^{-1}$, $1 \text{ см} - 30 \text{ мкм}$) (б); исходное состояние ($1 \text{ см} - 3 \text{ мкм}$, большое увеличение) (в); после облучения НСЭП ($3,5 \text{ Дж см}^{-2}$ имп. $^{-1}$, $1 \text{ см} - 30 \text{ мкм}$) (г).

Fe₂Ta размерами 30 нм (рис. 14а, б). Диффузное кольцо на электронограмме (рис. 14б) свидетельствует об образовании аморфной фазы Fe–Ta. Так как у поверхности концентрация Та велика, можно предположить, что образуется также твердый раствор замещения Fe(Ta). Судя по интенсивности рефлексов Fe (рис. 14б), объемная доля Fe(Ta) существенно меньше объемных долей Та и Fe₂Ta, причем основной фазой является Fe₂Ta [100]. На

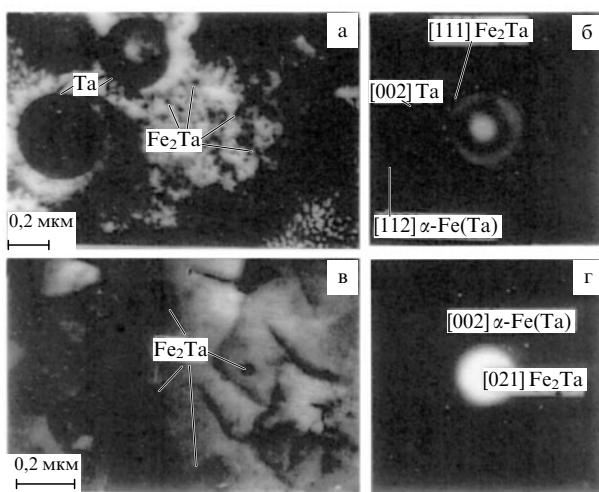


Рис. 14. Электронно-микроскопические наблюдения (ПЭМ) системы Та/Fe, облученной НСЭП ($3,5 \text{ Дж см}^{-2}$ имп. $^{-1}$, 0,8 мкс): (а, в) — микродифракционные картинки; (б, г) — на глубине 300 нм.

глубине 0,3 мкм (рис. 14г) наблюдаются зерна твердого раствора с повышенной ($8 \times 10^9 \text{ см}^{-2}$) плотностью дислокаций (в исходном α -Fe она порядка 10^8 см^{-2}) и частицы Fe₂Ta размером 50 нм. Аморфная фаза здесь отсутствует. На глубине $> 0,5$ мкм обнаружены хаотически расположенные зерна α -Fe с повышенной плотностью дислокаций. Такие плотности создаются термоупругими напряжениями, возникающими при быстрой кристаллизации расплавленного слоя [108, 109]. Дополнительный вклад вносят напряжения, обусловленные фазовым наклепом в процессе превращения $\gamma \rightarrow \alpha$, о чем свидетельствуют результаты конверсионной электронной мёссбауэрской спектроскопии [69, 101].

На рисунке 15 схематически показана структура перемешанного поверхностного слоя. Многообразие структур и послойный характер их формирования обусловлены неравномерным распределением Та по глубине и различием в скоростях охлаждения на поверхности и в более глубоких слоях расплава. Микротвердость, определенная алмазнымnanoиндентором, была различной в областях T₁, T₂, T₃. Максимальное упрочнение достигалось в области T₂, которая также обладала наибольшим сопротивлением к крупному разрушению. Экспериментально определен оптимальный режим облучения $\Phi = 3,3 \text{ Дж см}^{-2}$ имп. $^{-1}$, соответствующий максимальному упрочнению. На рисунке 16 приведена зависимость H от нагрузки для областей T₁ и T₂, по которой определена глубина упрочненного слоя $\sim 12-15$ мкм, что значительно превышает толщину перемешанного слоя (0,1–0,5 мкм). Среднее увеличение микротвердости относительно исходной достигало для области T₁ 0,7 ГПа и для T₂ 2,7 ГПа. Обработка в оптимальном режиме существенно улучшала и коррозионную стойкость системы. При испытании в насыщенном водяном паре в течение 36 ч величина уноса у облученных образцов была вдвое ниже, чем у необлученных. При более длительных испытаниях (240 ч) это различие возрастало на порядок. Отметим, что похожие результаты получены для системы Mo–Fe [101] и V–Fe. Следовательно, повышение механической прочности и коррозионной стойкости сталей и сплавов на основе

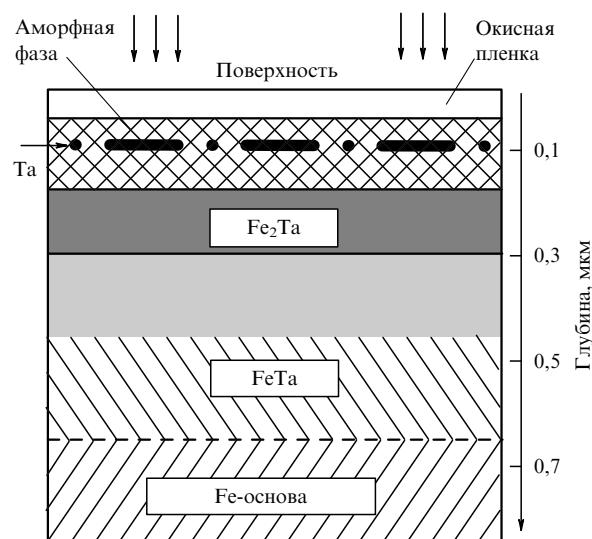


Рис. 15. Схематическое изображение структур поверхностного слоя системы Та/Fe после воздействия НСЭП.

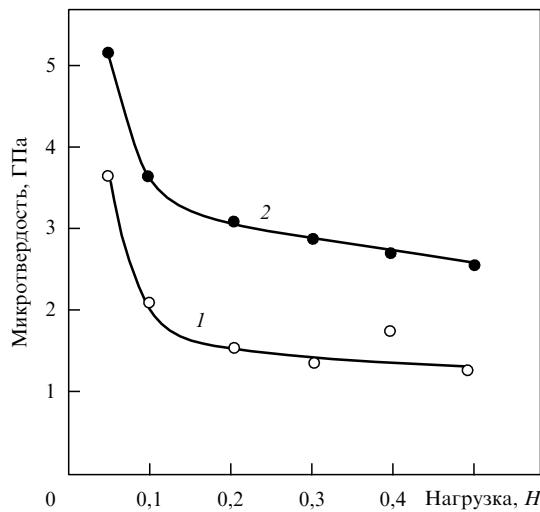


Рис. 16. Зависимость микротвердости от нагрузки на наноиндетор для областей T_1 (кривая 1) и T_2 (2).

железа может быть достигнуто посредством легирования тугоплавкими элементами (Ta, Mo, V) при облучении НСЭП только их поверхности, а не всего объема. Таким образом, появляется возможность реализации новой ресурсосберегающей технологии.

5. Массоперенос при воздействии интенсивных импульсных пучков заряженных частиц

Одним из возможных каналов диссиpации энергии МИП и СЭП является интенсивный перенос атомов в веществе. Механизмы переноса различны и зависят от глубины облучаемой мишени. Их изучение принципиально для установления природы миграции атомов в конденсированных средах. Если в поверхностных слоях массоперенос определяется, в основном, термо- и бародиффузионными процессами, то на больших глубинах основной вклад вносит ударная волна. Поэтому здесь мы рассмотрим две соответствующие модели.

5.1. Процессы массопереноса в поверхностных слоях

При облучении МИП ($0,5 \text{ МэВ}, 200 \text{ нс}, 120 - 170 \text{ А см}^{-2}$) системы тонких пленок Al ($0,8 \text{ мкм}$) на подложке Nb и Ag ($0,1 \text{ мкм}$) на подложке Cu обнаружено значительное проникновение атомов пленок в подложку на глубины, в несколько раз превышающие начальные толщины пленок [110–112]. Проникновение усиливалось с ростом числа импульсов облучения. Если принять за длительность диффузионных процессов время существования на поверхности образца жидкой фазы, то оценка эффективных коэффициентов диффузии дает $D \sim 10^{-2} - 10^{-4} \text{ см}^2 \text{ с}^{-1}$ [112], что на несколько порядков превышает их значения в жидких металлах. Из-за малого флюенса пучка ($< 10^{14} \text{ ион см}^{-2}$) этот интенсивный массоперенос не может быть объяснен баллистическими процессами. Подобный эффект был зафиксирован в [113], а также при импульсном лазерном и электронном воздействиях [114, 115].

Облучение МИП создает в образце мощные неравновесные поля температур и давлений, расчетные градиенты которых достигают 10^9 К м^{-1} и $10^{14} \text{ Па м}^{-1}$

[111]. Кроме потока j_C , вызванного градиентом концентраций, в этих условиях могут стать значительными термо- (j_T) и бародиффузионные (j_P) потоки [116], которыми обычно пренебрегают. Оценки показывают, что j_C, j_T и j_P соотносятся как $1:1:10^{-2}$. Поэтому в [111] было проведено детальное изучение диффузии в условиях градиента температуры, для чего термодиффузионное уравнение для концентрации диффузанта C

$$\frac{\partial C}{\partial t} = \nabla \left[D \left(\nabla C + \frac{K_T \nabla T}{T} \right) \right] \quad (5.1)$$

решалось совместно с задачей Стефана. Расчеты проводились до момента полного затвердевания образца. Если содержащаяся в расплаве примесь имеет разные пределы растворимости в твердой и жидкой фазе, то при движении фронта затвердевания в нем будет происходить сегрегация примеси [68, 108, 116]. Результирующий профиль ее концентрации определяется коэффициентом сегрегации, равным отношению пределов растворимости, а также соотношением между интенсивностью перемешивания расплава (например, в результате диффузии) и скоростью движения фронта. Анализ кинетики этого процесса при воздействии как МИП, так и СЭП показал, что эффект сегрегации может несколько изменить форму концентрационного профиля примеси, но этим эффектом нельзя объяснить проникновение примеси вглубь, по крайней мере, при однократном воздействии [111].

Другим возможным фактором усиления миграции атомов является перемешивание вещества в расплавленном слое в гидродинамическом режиме. Его причиной может быть тонкая структура мощности энерговыделения вдоль поверхности образца, возникающая в результате либо филаментации пучка, существование которой отмечено в [117, 118], либо преимущественного протекания тока по пикам шероховатости поверхности. В обоих случаях размер неоднородностей энерговыделения d_j составляет десятки микрон. Распределение плотности тока вдоль поверхности образца (направление y) задавалось функцией

$$j(y, t) = \bar{j}(t) \left(1 + \cos \frac{2\pi y}{d_j} \right). \quad (5.2)$$

Численное решение системы уравнений сплошной среды методом Эйлера при облучении мишени железа СЭП ($0,9 \text{ МэВ}, 70 \text{ нс}, 10 \text{ кА см}^{-2}$) и ее частичном испарении позволяло отслеживать координаты движущейся поверхности конденсированной фазы. Использовались уравнения состояния вещества [119]. В приповерхностный слой образца были введены точечные маркеры, имплантирующие частицы пленки. Отслеживались рассчитываемые через массовые единицы смещения маркеров по глубине x :

$$\Delta x_m(t) = \frac{1}{\rho_0} \int_{x_s(y_m, t)}^{x_m(t)} \rho(x, y_m, t) dx - x_m(0), \quad (5.3)$$

где x_m, y_m — координаты маркера, x_s — координата поверхности, ρ — плотность, ρ_0 — исходная плотность. Получено, что при $j = 10^4 \text{ А см}^{-2}$ в образце развивалось давление до 10^9 Па . Скорость переноса вещества в направлении x достигала $10^2 - 10^3 \text{ м с}^{-1}$, а

по $y = (0,1-1)$ м с⁻¹. В приповерхностных слоях величины Δx_m пропорциональны глубине залегания маркеров x_m и локальному градиенту $d_j/dy \sim d_j^{-1}$. К моменту окончания импульса облучения (200 нс) смещения Δx_m составили десятые доли микрона. Анализ поля скоростей в зоне вычислений $0 \leq x < 1$ мм, $0 \leq y < d_j/2$ показал наличие ненулевого момента импульса. Естественно предположить, что данное вихревое движение и затухание волн давления за время существования на поверхности образца жидкой фазы (несколько микросекунд) могут привести к существенному перемешиванию поверхностных слоев. Поэтому среди механизмов интенсификации миграции атомов при облучении твердого тела интенсивными пучками частиц важную роль играют диффузия и термодиффузия в расплавленном слое и его перемешивание в гидродинамическом режиме. Небольшое влияние на форму концентрационного профиля примеси оказывает сегрегация компонентов расплава при его направленной кристаллизации.

5.2. Массоперенос в поле ударной волны

Авторы [120] применили другой подход для определения градиента давления ударной волны и использовали пространственное распределение давления [121]

$$P = \frac{P_1 + P_2}{2} + \frac{(P_2 - P_1) \tanh(x/\delta)}{2}, \quad (5.4)$$

полученное из законов сохранения потоков массы, импульса и энергии в предположении малости давления $P_2 - P_1$ по сравнению со значениями P_1 и P_2 перед и за фронтом волны. Ширина фронта равна

$$\delta = \frac{8aV^2}{(P_2 - P_1)(\partial^2 V / \partial P^2)_S}. \quad (5.5)$$

Здесь $V = \rho^{-1}$ — удельный объем; кинематический коэффициент

$$a = \frac{v + \chi(\gamma - 1)}{2C_L^3} \quad (5.6)$$

задается значениями скорости звука C_L , кинематической вязкостью $v = \rho^{-1}[(4/3)\eta + \xi]$ (η, ξ — коэффициенты вязкости изотропной среды), плотностью ρ ; $\chi = K/(\rho C_P)$ — температуропроводность, определяемая теплопроводностью K и изобарической теплоемкостью C_P ; $\gamma = C_P/C_V$ — показатель адиабаты. Дрейфовый поток $I_{dr} = \rho v$ обеспечивается перемещением атомов в поле УВ со скоростью $v = -\mu \nabla P$, где μ — подвижность. Используя явное выражение для кривизны политропы $(\partial^2 V / \partial P^2)_S$, для эффективного коэффициента диффузии D , связывающего полный поток $I = I_{dr} + I_{dif}$ (где I_{dif} — диффузионный поток) и градиент концентрации ∇C , получаем

$$D = D_0 + \frac{\rho \mu}{8} \frac{\gamma + 1}{\gamma^2} \frac{C_L}{v + \chi(\gamma - 1)} \frac{C_L^2}{PV} \frac{(P_2 - P_1)^2}{P} |\nabla C|^{-1}, \quad (5.7)$$

где исходный коэффициент диффузии определяется формулой Эйнштейна–Смолуховского: $D_0 = \rho \mu T / \Omega$ (здесь Ω — атомный объем, T — температура в энергетических единицах). Нормированный коэффициент диффузии

имеет вид

$$\frac{\Delta D}{D_0} = \frac{D - D_0}{D_0} = \frac{1}{8} \frac{\gamma + 1}{\gamma^2} \frac{\rho C_L^3}{v + \chi(\gamma - 1)} \frac{P_2 - P_1}{P^2} \frac{L}{C_0} \frac{\Omega}{T}. \quad (5.8)$$

Здесь использована оценка $|\nabla C| \sim C_0/L$, где C_0 — концентрация меченых атомов на поверхности, L — глубина их проникновения после воздействия УВ. Согласно (5.8) возрастание массопереноса обеспечивается не только перепадом давления $P_2 - P_1$, но и уменьшением кинематического коэффициента (5.6), происходящим за счет снижения вязкости v и температуропроводности χ при повышении давления. При типичных значениях величин ($\rho \sim 1-10$ г см⁻³, $\gamma = 5/3$, $\Omega \sim 10^{-23}$ см³, $C_0 = 10^{-1}-1$, $L \sim 10^{-5}$ см, $T \sim 10^{-14}$ эрг) условие $\Delta D \gg D_0$ приводит к неравенству

$$\frac{(P_2 - P_1)^2}{P_2^2} \gg (10^{-2}-1)[v + \chi(\gamma - 1)]. \quad (5.9)$$

Выполнение (5.9) обеспечивается даже при слабом перепаде давлений в ударной волне, если она значительно понижает величину вязкости. В действительности, по-видимому, важную роль играет как величина давления, так и его градиент, уменьшающие значение кинематического коэффициента. Следовательно, другим возможным механизмом массопереноса, который в отличие от рассмотренного в предыдущем разделе имеет атермический характер, является УВ. Она способна вызвать усиленную миграцию атомов на больших глубинах, где вклад термодиффузионных процессов отсутствует. Интенсивность массопереноса определяется не только амплитудой давления УВ, но и его пространственным градиентом, который в зависимости от начального профиля УВ (определенного облучением) может возрастать. Этот вывод хорошо согласуется с кинетической моделью дефектообразования в поле ударной волны (см. раздел 3.4).

6. Формирование упругопластических волн в металлах при воздействии интенсивных пучков заряженных частиц

Воздействие МИП на твердые тела сопровождается твердо-, жидкоко- и газофазными процессами. При длительностях облучения ~ 100 нс для интенсивностей $I \leq 10^8$ Вт см⁻² преобладают твердофазные процессы, при $I \geq 10^{10}$ Вт см⁻² — газофазные и плазменные, а в среднем диапазоне 10^8-10^{10} Вт см⁻² они протекают совместно. Именно для последнего диапазона возникает задача определения вклада каждого из процессов в общий эффект взаимодействия.

Детальные экспериментальные и теоретические исследования формирования упругопластических волн в мишениях Al, Cu и Pb при облучении МИП на ускорителе ТОНУС выполнены в [122], где также определены и некоторые характеристики абляционной плазмы. Максимальная интенсивность на мишениях толщиной 0,2–1 см достигала $\sim 2 \times 10^8$ Вт см⁻² при площади сечения пучка 6–10 см². Различные энергии сублимации металлов приводили к существенно разным условиям формирования на поверхности мишени плазменного слоя и, как следствие этого, к различным параметрам генерируемых волн. Импульс напряжения регистрировался апе-

риодическим пьезодатчиком с разрешением $\sim 10^{-8}$ с, расположенным на задней (необлучаемой) поверхности. Импульс отдачи измерялся баллистическим маятником, а количество унесенной массы — взвешиванием. Динамика разлета плазмы регистрировалась электронно-оптической камерой. Амплитуды сигналов с пьезодатчиков были пропорциональны плотности тока пучка. На соответствующих фотохронограммах наблюдалось возрастание скорости разлета плазмы v_n с увеличением интенсивности облучения. В таблице 3 приведены результаты эксперимента и расчетов: унесенная за импульс масса Δm и импульс отдачи J . Значение v_n , оцененное по формуле $v_n = J/\Delta m$, изменялось в пределах $(1-8) \times 10^3$ м с⁻¹. Видна корреляция Δm с энергией сублимации металлов E_s : 0,96 кДж г⁻¹ (Pb), 4,8 кДж г⁻¹ (Cu), 9,8 кДж г⁻¹ (Al), т.е. меньшим значениям E_s соответствуют большие величины Δm .

Таблица 3. Экспериментальные и расчетные значения унесенной массы Δm и импульса отдачи J при воздействии МИП (0,2–0,6 МэВ, 100 нс, 1500 А см⁻²)

Мишень	Энергия сублимации E_s , Дж г ⁻¹	Эксперимент		Расчет	
		Δm , мг	J , Н с	Δm , мг	J , Н с
Al	9,8	0,45	3×10^{-3}	1,7	$2,2 \times 10^{-3}$
Cu	4,8	1,2	$1,5 \times 10^{-3}$	1,5	$1,9 \times 10^{-3}$
Pb	0,96	16,9	$1,3 \times 10^{-2}$	18,4	$1,3 \times 10^{-2}$

Процесс описывался системой, содержащей кинетическое уравнение переноса частиц, уравнения механики сплошной среды и широкодиапазонное уравнение состояния. При $I \leq 10^{13}$ Вт см⁻² можно пренебречь электронной и лучистой теплопроводностями [123]. Проницаемость среды σ во всех случаях превосходила 10^4 Ом⁻¹ м⁻¹, поэтому влиянием электрического поля (напряженность которого пропорциональна j/σ) на перенос частиц можно пренебречь, а кулоновская сила, действующая на частицы пучка, много меньше силы трения, определяющей их удельные потери энергии. Использовалась упругопластическая модель [124], в которой одними и теми же уравнениями описываются процессы как в зоне энерговыделения, где вещество может плавиться и испаряться, так и вне ее. Уравнения механики сплошной среды в одномерной геометрии с учетом объемного энерговыделения имеют вид

$$p \frac{dz}{dt} = \frac{\partial \Sigma}{\partial z}, \quad (6.1)$$

$$\frac{1}{V} \frac{dV}{dt} = \frac{\partial v}{\partial z}, \quad (6.2)$$

$$\frac{du}{dt} - VS_z \frac{d\Sigma_z}{dt} + (p+q) \frac{dV}{dt} = D, \quad (6.3)$$

$$\frac{dS_z}{dt} = 2\mu \left(\frac{d\Sigma_z}{dt} - \frac{1}{3V} \frac{dV}{dt} \right), \quad (6.4)$$

$$\frac{dS_x}{dt} = \frac{dS_y}{dt} = 2\mu \left(-\frac{1}{3V} \frac{dV}{dt} \right). \quad (6.5)$$

Здесь v , ρ , V , u — скорость, массовая плотность, удельный объем и внутренняя энергия вещества; z — пространственная координата; $\Sigma = S_z - (p+q)$ — полное напряжение; S_x , S_y , S_z — компоненты девиатора

напряжений; μ — коэффициент Ламэ; p — гидростатическое давление; q — искусственная вязкость; $d\Sigma_z/dt = \partial v/\partial z$ — скорость деформации; D — функция энерговыделения (энергия, выделяющаяся в единице массы в единицу времени при прохождении частиц через вещество). Пластическое течение описывалось условием сохранения девиатора напряжений на пределе текучести, поэтому система (6.1)–(6.5) дополнялась условием текучести Мизеса $S_x^2 + S_y^2 + S_z^2 \leq (2/3) Y_0^2$, где Y_0 — предел текучести для простого растяжения. Система включала уравнения состояния, учитывающие фазовые превращения в зоне энерговыделения [125] и решалась методом Уилкинса [126] с линейной искусственной вязкостью. Программа была оттестирована на имеющихся аналитических автомодельных решениях задач о расширении газа в пустоту, распространении звука в газе, соударении твердых тел и распаде произвольного разрыва в газе.

Функция энерговыделения вычислялась через дифференциальную плотность потока частиц в веществе многошаговым методом [127]. Тормозные свойства вещества для электронов определялись формулой Бете–Блоха, а для ионов — по данным таблиц [68]. Унесенная масса и импульс отдачи вычислялись по формулам

$$\Delta m = \lim_{t \rightarrow \infty} \left(S_b \int_{z_q}^{z^*} \rho(z) dz \right), \quad (6.6)$$

$$J = \lim_{t \rightarrow \infty} \left(S_b \int_{z_q}^{z^*} v(z) \rho(z) dz \right), \quad (6.7)$$

где S_b — площадь сечения пучка, z_q — координата свободной поверхности плазмы, z^* — координата плоскости, ограничивающей унесенную часть плазмы. Сравнение результатов моделирования с экспериментом дано в таблице 3. Поскольку из уравнений (6.6), (6.7) невозможно строго определить z^* , то было сделано предположение, что с мишени уносится та часть массы, плотность которой $\rho \leq \rho(z^*)$. Анализ расчетных распределений $\rho(z)$ показал, что массовая плотность плазменного факела резко уменьшается по мере приближения к свободной поверхности, и эта область с малой плотностью имеет скорость, на порядок превышающую массовую скорость среды при $\rho > \rho(z^*)$. Значение z^* было выбрано из условия $\rho(z^*) = 0,01\rho_0$, где ρ_0 — начальная плотность вещества. Тогда формулы (6.6), (6.7) дают значения Δm и J , близкие к экспериментальным, что подтверждает правомерность модели.

Общие закономерности формирования волн напряжения в твердой части мишени при облучении ее как электронными, так и ионными пучками обусловлены, в первую очередь, функцией энерговыделения, поэтому сравним распределения $D(z)$, нормированные на одну падающую частицу, в различных материалах. При энергиях частиц $\sim 0,5$ МэВ пробеги ионов примерно на два порядка ниже, чем пробеги электронов, поэтому ширина зоны энерговыделения для ионов тоже на два порядка меньше, чем для электронов. Тогда при одинаковых флюенсах СЭП и МИП амплитуды волн напряжений будут существенно различаться. Авторы [128] исследовали роль плазменного факела в генерации волн напряжения. При $j \leq 1$ кА см⁻² в твердой части мишени распространяется волна сжатия и непосредственно за ней волна разряжения, образующаяся в результате отражения от облученной поверхности волны сжатия. При

увеличении j вещество в зоне энерговыделения начинает интенсивно испаряться, и в результате передаваемого мишени импульса отдачи облучаемая поверхность становится свободной. Это приводит к уменьшению величины растягивающих напряжений и их полному исчезновению. Этот результат подтвержден также в [122]. При облучении ионами с той же энергией 0,5 МэВ из-за высокой плотности энерговыделения уже при $j \geq 20 \text{ A cm}^{-2}$ образуется аблационная плазма, генерирующая только волны сжатия.

Возможные механизмы генерации упругопластических волн отчетливо проявляются при облучении металлов МИП. Поля напряжений в различные моменты времени имеют двухволновую структуру, которая объясняется различными механизмами генерации ее составляющих. В начале облучения в твердой фазе зоны поглощения генерируется термоупругая волна. После плавления напряжения падают, в результате чего формируется задний фронт волны. Дальнейший нагрев пучком расплава увеличивает давление, создающее разлет вещества в сторону свободной поверхности с одновременной разгрузкой напряжений в сторону необлученной твердой части мишени. Такая разгрузка порождает новую волну сжатия в твердом теле. Двухволной структурой волны объясняется сложный вид осцилограмм с пьезодатчиков. При электронном облучении двухволновая структура не наблюдается, поскольку из-за большой ширины зоны энерговыделения термоупругая волна не успевает заметно выйти из области формирования структуры до того, как расплавится вещество.

Оценка начальной ширины волны напряжения Δx_0 с учетом описанного механизма ее генерации имеет вид

$$\Delta x_0 = R_0 + C_L \tau_p, \quad (6.8)$$

где R_0 , C_L и τ_p — пробег частиц, скорость продольного звука и длительность импульса облучения, соответственно. При облучении МИП $C_L \tau_p \gg R_0$, и Δx_0 определяется только длительностью τ_p . Для СЭП $R_0 \gg C_L \tau_p$, и Δx_0 зависит от энергии электронов пучка E . Справедливость оценки (6.8), по мнению авторов, подтверждают результаты моделирования. Например, увеличение E в два раза дает двукратный рост Δx_0 , тогда как при облучении МИП ширина волны меняется незначительно. Проанализируем влияние параметров облучения СЭП и МИП на амплитуду напряжений сжатия. Для СЭП размеры зоны энерговыделения велики, и разгрузка напряжений в твердотельную часть идет в течение времени $t \gg \tau_p$. Поэтому амплитуда напряжений определяется только значениями j и τ_p . Увеличение E не приводит к существенному росту амплитуды волны. При облучении МИП разлет вещества в узкой зоне энерговыделения идет одновременно с его нагревом, поэтому, несмотря на большую плотность энерговыделения, амплитуда волны остается невысокой. Повышение энергии ионов и, тем самым, ширины зоны энерговыделения увеличивает время разлета плазмы, что значительно увеличивает амплитуду волны.

Данные результаты показывают, что при облучении как СЭП, так и МИП в указанном диапазоне интенсивностей температура среды вне области энерговыделения меняется незначительно ($\leq 10 \text{ K}$). Поэтому в необлученной области все структурно-фазовые превращения создаются только за счет прохождения волн напряже-

ний. Однако эти результаты получены для толстых мишеней ($\sim 1 \text{ см}$) и из них нельзя получить информацию о характеристиках волн на малых глубинах ($< 1 \text{ мм}$), где превращения протекают наиболее интенсивно.

7. Синтез тонких пленок и ультрадисперсных порошков при воздействии интенсивных пучков заряженных частиц

Одним из эффектов взаимодействия концентрированных импульсных радиационных потоков энергии с твердыми телами является аблация (выброс) материала, возникающая из-за резкого нагрева вещества в области поглощения излучения и его перехода в пароплазменное состояние. Эффект был обнаружен при воздействии потоком лазерного излучения [127–131], а затем при облучении СЭП [4] и МИП [29, 71]. Он наблюдался на пучках нано- и микросекундной длительности при интенсивностях и флюенсах, превышающих некоторые пороговые значения. Аблационная плазма (АП) успешно применяется в технологиях получения тонких пленок и покрытий посредством ее осаждения на специальные подложки, при синтезе наноразмерных ультрадисперсных порошков и в новом методе диагностики характеристик концентрированных потоков энергии. Поэтому изучение закономерностей образования АП представляет научный и практический интерес.

7.1. Общие закономерности процесса аблации

Характеристики АП, генерируемой при импульсном лазерном воздействии на металлы, хорошо изучены в широком интервале интенсивностей (до $10^{14} \text{ Вт cm}^{-2}$) [129–134]. Однако теоретическое описание явления и сам способ получения плазмы сталкиваются с некоторыми принципиальными трудностями, что отмечено авторами [4], где АП впервые наблюдалась и исследовалась при облучении металлов СЭП. Два явных преимущества СЭП по сравнению с лазерами следующие:

1) возможность облучения больших площадей (десятка cm^2) с равномерно распределенной интенсивностью вплоть до значений $10^{11} \text{ Вт cm}^{-2}$ и значительно меньшие пробеги электронов по сравнению с диаметром пятна облучения позволяют сформулировать и решить одномерную задачу, которую трудно обосновать для узкосфокусированных лазерных импульсов;

2) описать аналитически процесс поглощения для электронов существенно легче, чем для низкоэнергетических фотонов. Поперечное сечение рассеяния электронов в мишени в первом приближении можно считать постоянным при длительностях СЭП в десятки наносекунд, в то время как из-за его резкого увеличения для низкоэнергетических фотонов уже во время лазерного импульса их глубина проникновения уменьшается на несколько порядков. Так как профиль поглощенной энергии определяет последующее гидродинамическое течение пароплазменного вещества, то для разработки количественных теорий его необходимо знать с высокой точностью.

Облучение СЭП (2 МэВ, 30 нс, флюенс Φ до 400 Дж cm^{-2} имп. $^{-1}$) тонких ($0,03\text{--}1 \text{ мм}$) пластинок меди сопровождалось аблацией материала в пароплазменном состоянии [4]. Динамика процесса регистрировалась скоростной фотокамерой. Основные результаты

наблюдений: а) выброс материала с поверхности происходил компактно в форме пластинки; б) скорость выброса была постоянной при облучении, но превышала тепловую скорость частиц. Их различие возрастило с ростом Φ . Зазор между выбросом и мишенью не наблюдался; в) выброс происходил по нормали к поверхности, независимо от направления пучка. При увеличении Φ от 40 до 250 Дж см⁻² имп.⁻¹ скорости выброса возрастили от 1800 до 5000 м с⁻¹, причем при одинаковом флюенсе наблюдался большой разброс их значений, который авторы объясняют неравномерным радиальным распределением энергии в пучке по закону $1/r^2$ и ее флуктуациями, достигающими 15 % от среднего значения. При $\Phi > 60$ Дж см⁻² имп.⁻¹ выброс наблюдался также со стороны задней (необлученной) поверхности мишени и имел такие же характеристики, что и для облученной поверхности. Этот процесс дополнительного сопровождался хрупким разрушением образца, через который прорастала продольная магистральная трещина. Толщина выброса увеличивалась с ростом Φ . Скорость расширения плазменного облака v зависела от его температуры T по закону $v \sim T^{1/2}$.

Скорость абляции частиц рассчитывалась следующим образом. Из-за очень малой продолжительности импульсов пучка и инерции материала его резкий нагрев в области облучения создает импульс сжатия, начальный профиль которого соответствует распределению поглощенной дозы с максимумом на глубине $\sim 0,2$ мм. Этот импульс распространяется в форме УВ как в глубь мишени, так и к облученной поверхности. При отражении от последней он трансформируется в импульс растяжения. В результате суперпозиции этих импульсов поверхностный слой находится под двойной нагрузкой и приходит в движение со скоростью, примерно равной удвоенной скорости частиц в импульсе сжатия u . Используя уравнения для распространения УВ, уравнение Грюнайзена, уравнение состояния и оценивая среднюю тепловую скорость частиц v по известной формуле статистической термодинамики, авторы [4] получили:

$$\frac{u^2}{v^2} = \frac{\pi \mu c_V}{4R}, \quad (7.1)$$

где R — газовая постоянная, μ — молярный вес; c_V — удельная теплота при постоянном объеме. С ростом температуры c_V резко возрастает, и $u \gg v$. Это объясняет следующий экспериментальный факт: хотя лазерное облучение генерирует температуру в несколько эВ, скорость инжектируемых ионов в АП достигает нескольких кэВ [4]. Данная теория хорошо описывает характеристики АП, получаемой лазерами и СЭП.

При воздействии МИП на металлы наблюдались такие же общие закономерности процесса абляции, как и при лазерном и электронном облучении. Однако при одинаковых флюенсах и интенсивностях МИП и СЭП, а также одинаковых энергиях частиц пробеги ионов, на порядки меньшие, чем пробеги электронов, вызывали большие скорости нагрева, а следовательно, интенсифицировали абляцию.

В цикле работ [30, 32, 34, 35, 82, 135] авторами экспериментально и теоретически получены надежные соотношения между параметрами АП и характеристиками тонких пленок. Весь процесс представлен двумя последовательными стадиями: испарения материала с

поверхности в виде расширяющегося плотного пароплазменного облака, взаимодействующего с пучком, и последующего адиабатического расширения плазмы в вакуум и ее осаждения на подложку. Толщина испаряющегося слоя принималась равной толщине слоя, прогретого МИП при постоянной скорости его испарения. Поведение плазмы описывалось одномерной гидродинамической моделью, включающей уравнение непрерывности (7.2), уравнения для момента (7.3) и энергии (7.4), а также уравнение состояния (7.5):

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \rho \frac{\partial v}{\partial x} + v \frac{\partial \rho}{\partial x} = 0, \quad (7.2)$$

$$\frac{\partial v}{\partial t} + v \frac{\partial v}{\partial x} + \frac{1}{\rho} \frac{\partial \rho}{\partial x} = 0, \quad (7.3)$$

$$\frac{\partial e}{\partial t} + v \frac{\partial e}{\partial x} + \frac{P}{\rho} \frac{\partial v}{\partial x} = \varepsilon(1 + \alpha)t^\alpha, \quad (7.4)$$

$$P = (\gamma - 1)\rho e, \quad (7.5)$$

где ρ , v , P , e , x (≥ 0), t и γ — массовая плотность, скорость, давление, удельная энергия, координата, время и отношение удельных теплот, соответственно. Постоянные ε и α выбирались так, чтобы правая часть (7.5) представляла мгновенную поглощенную мощность на единицу массы расширяющегося материала: $\varepsilon \sim I/(R\rho_0)$, где I — интенсивность облучения, R — пробег ионов пучка, ρ_0 — исходная плотность. Если $\alpha = -1$, то поглощения энергии нет (случай адиабатического расширения) при $t > \tau_p$, где τ_p — длительность импульса облучения; $\alpha = 0$ соответствует поглощению энергии с постоянной скоростью, а при $\alpha = 1$ эта скорость линейно возрастает со временем. В результате решения (7.2)–(7.5) получены зависимости $\rho(x, t)$, $v(x, t)$, плотности ионного тока плазмы $I_B(x, t) \sim \rho v$ и сделана оценка температуры T_0 , соответствующей максимуму тока I_B .

Облучение проводилось на ускорителе ETIGO-II протонами (> 80 %) и ионами углерода (1,2–1,6 МэВ, 70 нс, 1000 А см⁻², 10⁸ Вт см⁻², 25 Дж см⁻² имп.⁻¹). Мишени Ti и Al располагались под углом 45° к оси пучка на расстоянии 37 мм от подложки. Получено $T_0 \sim 1,6$ –2 эВ; $I_{B\max} \sim 500$ А см⁻² для Ti и 400 А см⁻² для Al. Эксперименты показали, что плотность плазмы n и ее температура сильно зависят от времени (при $t < \tau_p$) и координаты и изменяются в широких пределах от 10¹⁸ до 5×10^{22} см⁻³ и 0,3–20 эВ, соответственно, причем выполняется соотношение $n \sim T$. Расчетные величины T_0 и I_B также сильно зависят от скорости поглощения энергии и τ_p и слабо зависят от α . Степень расширения плазмы вблизи поверхности мишени при облучении существенно меньше, чем при адиабатическом расширении. Экспериментальные и расчетные зависимости $I_B(t)$ на подложке для различных ускоряющих напряжений (энергий) ионов пучка хорошо согласуются (рис. 17), что свидетельствует об адекватности принятой модели. Наблюданное увеличение расхождения между ними на более ранних стадиях, видимо, связано с рекомбинацией ионов в плазме, которая в модели не учитывалась. Позднее экспериментально установлены линейные зависимости T_0 и энергии E_d , приходящейся на один испаряющийся атом, от Φ (до 80 Дж см⁻² имп.⁻¹), ($E_d = 3$ –15 эВ на атом) [136].

Этим же авторам удалось определить динамику трансформации тепловой энергии АП в ее кинетическую

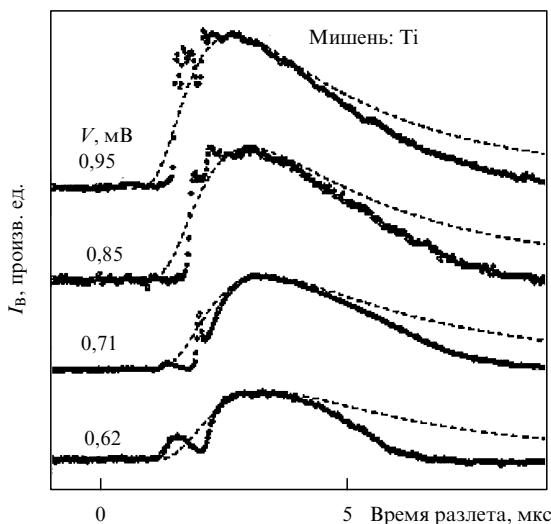


Рис. 17. Временная зависимость ионного тока аблационной плазмы, получаемой при облучении МИП (протоны > 80 %, ионы углерода; 1,2–1,6 МэВ; 70 нс) мишени Ti при различных значениях ускоряющего напряжения на диоде: сплошная линия — эксперимент; штриховая — расчет.

энергию посредством вычисления временных зависимостей температуры плазмы на поверхности мишени $T(t, x = 0)$, ее динамического $P_d \sim \rho v^2/2$ и статического P (см. (7.5)) давлений на различных расстояниях x от мишени [137]. Использовались те же уравнения при линейном вводе энергии пучком ($\alpha = 0$), что наиболее близко к реальному режиму облучения, при $I \sim \sim 10^9$ Вт см^{-2} . Расчетная зависимость $T(t, x = 0)$ для мишени Ti показывает, что на первой стадии нагрева и испарения температура очень быстро (примерно за 70 нс) достигает максимума $T_{\max} \sim 1,6$ эВ. Затем на второй стадии адиабатического расширения плазма быстро охлаждается (до $T_{\max}/2 \sim 0,8$ эВ за время ~ 1 мкс), при этом тепловая энергия частиц переходит в кинетическую. Максимальное значение P_d при $x = 3$ см составляло $\sim 1,4 \times 10^7$ Па и достигалось при $t \sim 2$ мкс. Оно примерно на порядок превышало статическое давление, т.е. кинетическая энергия плазмы существенно превосходила ее тепловую энергию.

7.2. Получение тонких пленок

Для получения тонких пленок (ТП) плазма осаждалась на специальные подложки без их существенного нагрева, что позволяло исключить возможные нежелательные температурные изменения структуры и состава материалов пленки и подложки. Использование СЭП и МИП для получения АП при облучении безызлучательных мишней имеет определенные преимущества по сравнению с лазерными пучками:

- 1) высокий коэффициент поглощения пучков;
- 2) объемность поглощения, позволяющая избежать частично нежелательного перегрева материала мишени и создавать более равномерное распределение температуры по глубине, которое исключает взрывное поглощение излучения в тонком расплавленном слое мишени, характерное для лазерного облучения. Объемность поглощения позволяет также значительно увеличить массу АП (например, при облучении МИП среднее количество удалаемого материала на три порядка

выше, чем при лазерном облучении [138, 139]) и тем самым достичь высоких скоростей осаждения ($\sim 1 \text{ см с}^{-1}$) на порядки больших, чем при любых других методах;

3) большие площади облучения;

4) возможность построения одномерной модели процесса и более точного описания взаимодействия частиц с мишенью;

5) существенно большие КПД, вследствие чего стоимость получения единицы энергии при использовании МИП на три порядка меньше, чем при лазерном облучении.

Оценки дают также невысокие стоимости получения пленки толщиной 1 мкм (5 долларов на м^2) [17]. Эти пучки нашли широкое и успешное применение в технологиях синтеза ТП. Созданная в Японии технология Ion Beam Evaporation (IBE) позволяет производить ТП со специальными свойствами, включая многослойные пленки из высокотемпературных сверхпроводящих материалов для микросистем электронной и оптической промышленности [32, 34]. IBE дает возможность получать толстые пленки, в том числе из тугоплавких металлов, формировать аморфные и кристаллические слои с заданной структурой, напылять керамические материалы на металлы, осуществлять синтез наноразмерных ультрадисперсных порошков. На основе IBE реализован новый способ получения алмазоподобных покрытий [17, 32, 140, 141]. Технология IBE могла бы найти применение в медицине для нанесения ТП на поверхности вживляемых креплений с алюминием, в частности, пленки гидроксиапатита — основного неорганического компонента в кости человека и животных [142].

Оказалось, что характеристики ТП, созданных облучением, отличаются от свойств ТП полученных при вакуумном осаждении или распылении. Посредством определенного выбора материала распыляемой мишени, режимов облучения, состава и параметров среды облучения, материала подложки, а также последующего отжига ТП удалось получить пленки с повышенной механической прочностью и специальными электрическими, магнитными и оптическими свойствами. Здесь мы проанализируем наиболее важные, на наш взгляд, экспериментальные результаты по закономерностям формирования ТП. Для облучения использовались пучки легких ионов (протоны, углерод, азот и др.), так как, во-первых, их пробеги в мишени больше, чем для тяжелых и, во-вторых, их легче получить. В настоящее время методом IBE синтезированы пленки из различных материалов: металлов (Al, Pb, Mo, W, Ti, Au, Fe, Zn, Cu, Nb), керамик (BN, SiC, $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$, ZrO_2 , AlN) и диэлектриков (B, C, ZnS, ZnS + Mn, BaTiO₃), включая апатиты. На рисунке 18 представлены две схемы осаждения ТП на подложку для фронтальной (frontside, FS) и обратносторонней (backside, BS) конфигураций. Последняя стала использоваться недавно и будет рассмотрена позднее. МИП падал под углом 45° на мишень (рис. 18а). Подложка располагалась на держателе ниже или выше мишени так, чтобы ее поверхность была параллельна облучаемой поверхности мишени, что обеспечивало равномерное по толщине осаждение пленки. При использовании геометрии в среднем одна треть распыляемого материала попадала на подложку, при этом, как показала фотосъемка, часть его огибала подложку. Осаджение проводилось в вакууме (10^{-4} – 10^{-5} торр) с

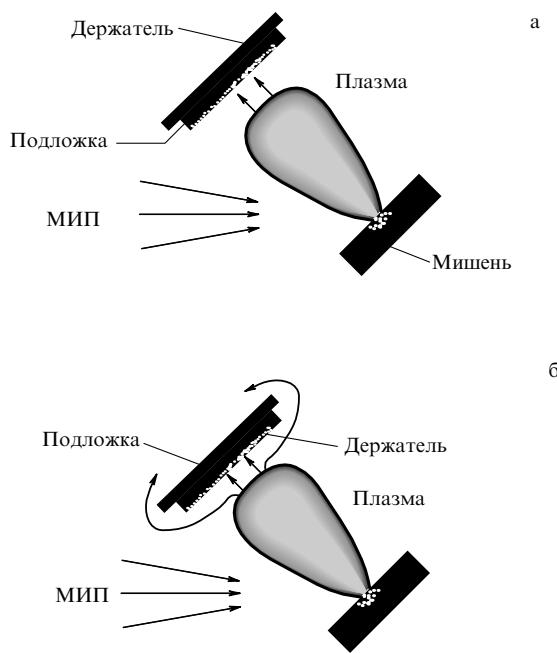


Рис. 18. Схема осаждения тонкой пленки при облучении МИП: для фронтальной (IBE/FS) (а) и обратносторонней (IBE/BS) (б) конфигураций.

незначительным содержанием примесей в остаточных газах. Тогда при малой концентрации этих же примесей в подложках достигалась очень высокая чистота пленок.

Авторы [36] использовали МИП (350–50 кэВ, 30 кА, 0,4 мкс), содержащий ионы H^+ , C^+ , C^{++} и O^{++} для получения ТП при облучении титана и графита. Подтверждено наличие пороговой плотности поглощенной энергии, соответствующей определенному флюенсу, составляющему для Ti и графита 5 и 12 Дж см^{-2} имп. $^{-1}$, соответственно. Энергетический спектр частиц пучка принимался неизменным во время облучения. Температурное поле в мишени определялось путем численного решения одномерного уравнения теплопроводности при постоянной плотности материала и переменных значениях теплоемкости и коэффициента теплопроводности. Уравнение включало тепловой источник, отражающий реальный ввод энергии, определяемый по осциллограммам тока и напряжения пучка. Гидродинамическое течение материала и потери на излучение не учитывались. Температура мишени при абляции принималась равной температуре кипения. Рассматривался только фазовый переход твердое тело–пар, что справедливо полностью только для графита. Строго говоря, для металлов надо учитывать скрытую теплоту как плавления, так и испарения, однако вторая значительно пре- восходит первую (например, для Ti примерно в 15 раз). При пороговом Φ масса абляции изменялась скачкообразно от нуля до массы слоя, соответствующей пробегу ионов пучка. Экспериментально определены в зависимости от Φ : а) отношение толщины слоя абляции к глубине поглощения пучка; б) отношение энергии, идущей на абляцию к падающей энергии; в) пороговая энергия поглощения на один атом E_a , необходимая для начала абляции (4 эВ для Ti и 7 эВ для графита) и г) зависимость E_a от глубины мишени в области поглощения пучка.

Некоторые особенности получения пленок ZnS, $YBa_2Cu_3O_{7-x}$, $BaTiO_3$, ZrO_2 и Al при использовании того же ускорителя ETIGO-II отмечены в [16, 29, 32, 142–144]. При осаждении плазмы с мишени ZnS кубической структуры на стеклянной подложке формировалась ТП с гексагональной структурой. Ее толщина линейно возрастала с числом импульсов облучения [16, 29]. После добавления в нее Mn как центра окраски она входила в состав мультислоя, приготовленного последовательным осаждением из плазмы слоев $BaTiO_3$, ZnS : Mn, Ta_2O_5 , HfO_2 и Al на индиево-титановый оксид (ITO), покрытый стеклом [16]. Этот мультислой применялся в электролюминесцентном приборе и давал интенсивное (до 105 кд см^{-2}) желто-оранжевое свечение.

Когда $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ и MgO (100) использовались как мишень и подложка соответственно, кристалличность в пленке отсутствовала [16, 32]. Однако после отжига (2 ч при 985 °C, а затем 10 ч при 485 °C в кислороде) она появлялась с выраженной ориентацией по оси c . Давление кислорода сильно влияло как на сопротивление пленки, так и на его зависимость от температуры.

Изменения кристалличности и стехиометрического состава наблюдались в ТП, полученной при облучении мишени с составом (мол. %): 92,7 $BaTiO_3$; 4,5 TiO_2 ; 2,6 Nd_2O_3 ; 0,1 Bi_2O_3 и 0,1 MnCo при осаждении на подложку Si(100), покрытую алюминием. Структурный и фазовый состав пленки, в основном, определялся отношением содержания Ti/Ba в ней, которое зависело от числа импульсов [16, 32]. Пленка, осаждаемая на подложку Si(100) с мишени BN с гексагональной структурой (h-BN) сохраняла эту структуру при малых интенсивностях облучения, а при повышенных дополнительно к ней появлялась кубическая структура [16, 32]. Добавление Y_2O_3 в мишень моноклинного ZrO_2 при формировании ТП на подложке Si(100) также влияло на структуру пленок. Если его содержание составляло 1,1–4,5 мол. %, то появлялась тетрагональная структура, а при 7–12 мол. % она переходила в кубическую [32].

Некоторые элементарные процессы, ответственные за формирование АП, получаемой с мишней Pb, Cu, Mo, Ti, Fe и W (имеющих различную энергию сублимации), удалось установить авторам [144]. Использовался сильноточный ускоритель EDIDATRON (80 % H^+ , 20 % C^+ ; 400 кэВ; 50 нс; $j = 20–100 \text{ A cm}^{-2}$; энергия в импульсе до 5 кДж). Угловое распределение флюенса частиц в АП для всех металлов имело вид косинусоиды. Зависимость толщины испаряемого слоя T_a от нормализованной поглощенной энергии E_n имела пороговый характер. Значение E_n определялось как отношение энергии, поглощенной в области пробега частиц пучка, к энергии, необходимой для нагрева мишени до температуры кипения. Резкий рост T_a при $E_n = 1$, обнаруженный для всех металлов, показывает, что энергия сублимации является пороговой величиной для абляции. Эти результаты хорошо согласуются с представленными в разделе 6, где исследовался вклад абляции в формирование упругопластических волн. Зависимости $T_a(E_n)$ и $T_a(j)$ жестко коррелируют. Наблюданное резкое увеличение T_a от j при $j > j_1 = 30 \text{ A cm}^{-2}$ указывает, что значение j_1 можно также считать пороговым. Зависимость $T_a(j)$ для Pb имеет максимум $\sim 0,3 \text{ мкм}$ при $j = 100 \text{ A cm}^{-2}$, что существенно меньше пробега частиц пучка ($\sim 2 \text{ мкм}$). При $j > 100 \text{ A cm}^{-2}$ T_a уменьшается. Найденные скорости ионов свинца изменились в широких пределах 8×10^3 –

$6 \times 10^4 \text{ м с}^{-1}$ при $j = 240 \text{ А см}^{-2}$ и оказались существенно меньше, чем в плазме, генерируемой облучением KrF лазера [145].

Высокие скорости осаждения ТП $\sim 30\text{--}300 \text{ нм имп.}^{-1}$ ($5\text{--}50 \text{ см с}^{-1}$) были достигнуты при облучении Cu, Y, Ba, Ag, Al и углерода на ускорителе ANACONDA ($\sim 50\%$ H⁺, $\sim 50\%$ C⁺; 150 кДж; 600 кэВ; 600 нс; $10\text{--}25 \text{ Дж см}^{-2} \text{ имп.}^{-1}$) [139]. Они на три порядка превосходили скорости при лазерном облучении при одинаковых флюенсах и интенсивностях пучков. С ростом числа импульсов наблюдалось неравномерное взрывное осаждение пленки, а шероховатость ее поверхности возрастила. Авторы объясняют это ударным упрочнением мишени под воздействием повторных импульсов и неравномерным распределением плотности тока по сечению пучка, вызывающим неоднородный нагрев поверхности мишени.

В [32] плазма легких ионов, полученная при облучении мишени (95 % BN, 5 % CaO и B₂O₃) на ускорителе ETIGO-I (1,2 МэВ, 240 кА, 50 нс), использовалась для высокодозной имплантации в Ti (99,7 % чистоты). При плотности тока плазмы $\sim 1 \text{ кА см}^{-2}$ доза имплантируемых в мишень ионов за импульс составляла $\sim 1\%$ начальной атомной плотности Ti, в котором при этом наблюдалось образование соединения TiN. Примерно после 20 импульсов облучения поверхностная твердость Ti линейно возрастала с ростом числа импульсов N_i и при $N_i = 70$ она увеличилась в 1,6 раза по сравнению с исходной.

Двумя ключевыми моментами в технологии осаждения пленок является их возможный нагрев и содержание примесей. Для достижения высоких скоростей осаждения подложку располагают вблизи мишени. За время конденсации $\sim 10 \text{ мкс}$ формируется слой толщиной до 1 мкм. Тогда еще горячая плотная плазма за счет нейтрализации ее ионов и теплоты конденсации может вызвать значительный нагрев пленок. Он зафиксирован при осаждении плазмы, получаемой на ускорителе ANACONDA, на тонкопленочные металлические резисторные подложки. Максимальные температуры пленок (до 2000 °C) достигались при осаждении углерода на стекло [146].

Анализ примесных элементов в пленках, получаемых при облучении особо чистых (99,99 %) W и Au протонно-углеродным пучком (350–500 кэВ, 60 нс, $(0,7\text{--}1,5) \times 10^8 \text{ Вт см}^{-2}$) выполнен в [147, 148]. Осаждение проводилось при высоком вакууме с давлением остаточных газов C, N и O менее 5×10^{-5} торр. Концентрации этих же газов в особо чистой подложке GaAs не превышали $10^{-5}\%$. Толщина пленок определялась рентгеновским флюоресцентным анализом, а концентрации C и N в них — методом ядерных реакций с энергией дейtronов 3,1 МэВ и ВИМС. Наилучшие результаты получены при предварительном осаждении пленок и использовании специальных холодных азотных ловушек [148]. Максимальная поверхностная плотность пленок W составляла $\sigma_W \sim 1,3 \text{ мг см}^{-2}$ с плотностями примесных элементов $\sigma_C = 9,7 \text{ мкг см}^{-2}$ и $\sigma_N = 0,62 \text{ мкг см}^{-2}$ при их содержании (в вес. %) $f_C = 0,75\%$ и $f_N = 0,75\%$. Для Au эти значения следующие: $\sigma_{Au} \sim 1,3 \text{ г см}^{-2}$, $\sigma_C < 0,2 \text{ мкг см}^{-2}$, $\sigma_N < 0,1 \text{ мкг см}^{-2}$, $f_C = 0,1\%$, $f_N = 0,05\%$. Общее количество C возрастало с числом импульсов облучения (их частота составляла $8\text{--}10 \text{ мин}^{-1}$), что указывало на загрязнение пленок остаточными газами в процессе

осаждения. Загрязнение происходило также в паузах между импульсами. В этих же работах исследовано угловое распределение флюенса частиц плазмы, получаемой при облучении 1 см² дисковых мишеней ZnS, Nb, W, Au и Pb на ускорителе TEMP (60 нс, 250 А см^{-2} , $9 \times 10^7 \text{ Вт см}^{-2}$, $5 \text{ Дж см}^{-2} \text{ имп.}^{-1}$). Оно определялось посредством измерения плотности этих элементов по поверхности очень тонких (0,2–400 нм) пленок. Как и в других экспериментах, оно близко к косинусоидальному. Однако угловое распределение толщины пленки оказалось очень узким; оно хорошо аппроксимируется функцией $\exp(-t\theta)$, где θ — угол между выбранным направлением и нормалью к поверхности мишени, а параметр t изменяется в пределах 3–4,3 для различных материалов. Таким образом, налицо резкий контраст по отношению к косинусоидальному распределению флюенса частиц в испаряемой плазме.

Перспективным оказалось нанесение алмазоподобных покрытий (diamondlike coating, DLC) [17, 32, 140, 141]. Например, при облучении графитовых мишеней смешанным пучком H/C/O (350 КэВ, 400 нс, $30 \text{ Дж см}^{-2} \text{ имп.}^{-1}$) и осаждении плазмы при комнатной температуре на подложки из кремния и стекла, расположенные на расстоянии 150–225 мм от мишени, достигнуты скорости роста пленок $\sim 25 \text{ нм на импульс}$. Исследование пленок показало, что они состоят из частиц алмаза сферической формы диаметром $\sim 100 \text{ нм}$, а их электрическое сопротивление изменяется в пределах 1–1000 Ом см; это на порядки превосходит сопротивление графита, но существенно меньше, чем у алмаза. Такие пленки на порядки повышают механическую прочность и износостойкость рабочих пар в узлах трения, что делает эффективным их использование, например, в аэрокосмической промышленности.

Совсем недавно в Японии был разработан новый метод получения пленок по технологии IBE, когда инжектируемая плазма осаждается не по стандартной технологии IBE/FS (рис. 18а), а на задней стороне подложки, расположенной за держателем (IBE/BS) (рис. 18б) [143]. Осаждение пленки происходит при диффузии плазмы через тонкий держатель. Поверхность мишени YBa₂Cu₃O_{7-x} облучалась на ускорителе ETIGO-II ($\sim 90\%$ протонов, 1,1 МэВ, 70 нс, 500 А см^{-2} , $30 \text{ Дж см}^{-2} \text{ имп.}^{-1}$, $4 \times 10^8 \text{ Вт см}^{-2}$). Подложки из Si(100), MgO(100) и SrLaGaO₄(100) располагались на расстоянии 60 мм от мишени. На поверхности пленки, осаждаемой по методу IBE/FS, наблюдались каплевидные бугорки иттрия и меди (в виде апельсиновой корки) диаметром $> 1,5 \text{ мкм}$, возникающие из-за выброса капель расплава с мишени. Они отсутствовали, когда пленка осаждалась по технологии IBE/BS. При этом средняя шероховатость пленки составляла 10,35 нм, что в пять раз меньше, чем при IBE/FS (55,47 нм). Хотя скорость осаждения при IBE/BS составляет $\sim 30 \text{ нм имп.}^{-1}$, что на порядок ниже, чем при IBE/FS, она, тем не менее, существенно превосходит скорости осаждения при лазерном облучении. Зафиксированы некоторые различия в кристалличности пленок, которые зависят от состава и структуры материала подложки. Два других важных преимущества метода IBE/BS заключаются в следующем: он позволяет, во-первых, избежать бомбардировки поверхности пленки высокоэнергетическими частицами плазмы, нарушающими качество ее поверхности, и, во-вторых, повысить чистоту пленок, в частно-

сти, существенно снизить содержание в них остаточных газов. Полученные результаты свидетельствуют о перспективности технологии IBE/BS.

7.3. Синтез ультрадисперсных наноразмерных порошков

Ультрадисперсные порошки с размерами зерен в несколько нм представляют интерес для производства компонентов космического топлива, магнитных плат из металлов Fe, Ni и Co, высокоеемких магнитных запоминающих устройств, подложек для интегрирующих контуров из AlN, высокопрочных керамик, а также катализаторов из Al_2O_3 [30, 136, 149]. В промышленности такие порошки производятся, главным образом, посредством химических реакций в жидкой фазе, однако при этом возникают проблемы с составом и химической чистотой продуктов.

Синтез наноразмерных порошков Al исследовался в [30, 135, 148]. Плазма, полученная с помощью ускорителя ETIGO-II, осаждается на стальном коллекторе с мелкими ячейками, располагаемом на различных расстояниях от мишени $L = 270 - 330$ мм в камере с изменяемым давлением кислорода (от 1 до 10 торр). При давлении 1 торр получается порошок наноразмерных сферических частиц Al с малым содержанием $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$. Последний образуется в результате реакции Al с O_2 . С ростом давления до 10 торр преобладает $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ с малой фракцией Al. Изменяя температуру последующего отжига в интервале 800–1200 °C, авторы получали порошки как с различными распределениями частиц по размерам в пределах 5–65 нм, так и с разным содержанием фракций $\alpha\text{-Al}$, $\delta\text{-Al}$ и $\gamma\text{-Al}$ [30, 135, 148].

Этими же авторами получены ультрадисперсные порошки TiO_2 и TiN [150]. Распределения частиц TiO_2 по размерам зависят от L (рис. 19). При малых $L \sim 100$ мм пар в плазме слишком горячий для конденсации, поэтому размеры частиц велики (до 2 мкм). На больших расстояниях (~ 300 мм) пар остывает, тогда время для его пересыщения, очевидно, становится достаточным, а его конденсация в мелкие частицы (2–50 нм) начинается между мишенью и коллектором.

Анализ представленных результатов позволяет заключить, что несмотря на различные составы материалов мишеней и разные виды облучений можно выделить следующие основные особенности генерации АП:

1) процесс наблюдается для лазерного, электронного и ионного облучений и имеет пороговый характер по интенсивности и флюенсу за одиночный импульс облучения;

2) процесс является высокоскоростным, а его динамика может быть представлена двумя последовательными стадиями выброса плазмы с мишени и ее последующего расширения в вакуум. Скорости выброса зависят от режимов облучения и существенно превосходят тепловые скорости ионов. Концентрация и температура плотной (до $5 \times 10^{22} \text{ см}^{-3}$) АП пропорциональны интенсивности и флюенсу облучения.

Процесс формирования и структура ТП определяются: а) видом облучения и его режимами; б) составом и параметрами среды; в) составом материалов и их структурой как в мишени, так и в подложке; г) режимом последующего отжига пленок. Эти же факторы влияют на характеристики синтезируемых ультрадисперсных наноразмерных порошков.

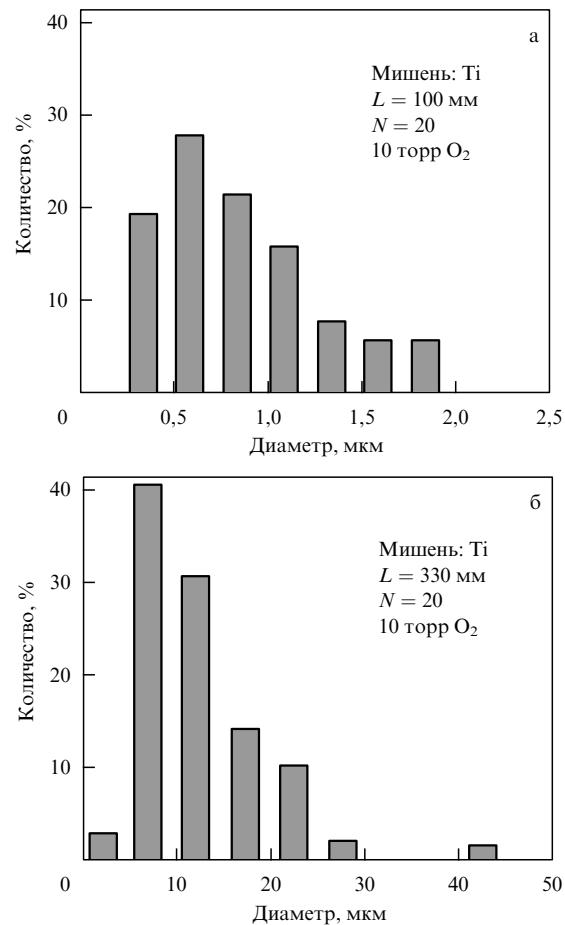


Рис. 19. Распределения частиц порошка TiO_2 по размерам при различных расстояниях L коллектора от мишени при облучении МИП на ускорителе ETIGO-II.

Остаются проблемы, связанные с улучшением качества поверхности и морфологии пленок, повышением их чистоты и достижением равномерной толщины. Разработанная в Лаборатории пучковых технологий университета г. Нагаока (Япония) технология IBE/BS позволила частично решить некоторые из них. Совсем недавно здесь же получены хорошие результаты при установке промежуточных отражателей для плазмы до ее осаждения, а также специальных геометрических конструкций, удерживающих плазму вблизи подложки. Другим решением является снижение массы выброса плазмы, что может быть достигнуто путем уменьшения флюенса облучения и толщины мишени. Этой же цели, как отмечают авторы [151], служит использование при тех же самых флюенсах более тяжелых ионов в пучке, например, Ne^+ , которые имеют меньшие пробеги и снижают толщину слоя аблиции.

8. Улучшение эксплуатационных характеристик металлов, сплавов и изделий из них электронными и ионными пучками

Прикладной задачей исследования процессов модификации материалов при воздействии интенсивных пучков заряженных частиц является улучшение эксплуатационных характеристик готовых изделий. В настоящем

обзоре описаны основы и предпосылки некоторых новых радиационных технологий. Однако по ряду причин далеко не все из них нашли промышленное применение. Поэтому здесь мы представим несколько типичных примеров их реализации. При выбранном виде и энергии частиц требуемую технологию можно реализовать, используя определенное сочетание интенсивностей и флюенсов пучков. Например, при применении МИП с длительностью импульса ~ 100 нс для модификации механических и триботехнических свойств металлов их флюены не должны превышать $10 \text{ Дж см}^{-2} \text{ имп.}^{-1}$, в то время как в технологиях испарения они составляют $10-50 \text{ Дж см}^{-2} \text{ имп.}^{-1}$. Для повышения производительности обработки в отдельных случаях разрабатывались специальные виды ускорителей и конструкции вакуумных камер, позволяющие одновременно облучать большие площади (до 1000 см^2) и обрабатывать большое число изделий [146, 148, 150].

Обработка МИП улучшает электроэррозийную стойкость покрытий магнитоуправляемых герметизированных контактов (герконов) [152]. Обычно в газонаполненных герконах средней и малой мощности для обеспечения низкого и стабильного сопротивления контактов и их устойчивости к электрической эрозии применяют гальванические покрытия на основе золота (сплавы Au/Co, Au/Ni, Au/Ni/Rh). В [152] обрабатывались герконы марки МКА-2701 с двухслойным покрытием Ni (толщина 2 мкм) и Au (0,5 мкм). Кассета с 250 герконами облучалась МИП ($\sim 50\%$ C^+ ; $\sim 50\%$ H^+ ; 300–400 кэВ; 100 нс; $20-100 \text{ A cm}^{-2}$). Элементный и фазовый анализ облученных герконов показал перемешивание золота с никелем с образованием многофазной структуры поверхности слоя. Их ресурсные испытания при напряжении коммутации $U_k = 60$ В и токе $I_k = 0,08$ А показали увеличение минимального ресурса работы в 4–5 раз по сравнению с гальвано-химическим покрытием. Число срабатываний увеличилось до 10^7 , а сопротивление герконов не превышало 0,05 Ом (при микромощном режиме коммутации $U_k = 2 \times 10^{-2}$ В, $I_k = 10^{-2}$ А). Все их электрические параметры удовлетворяли техническим требованиям, а выход пригодных изделий после обработки соответствовал международным стандартам.

В [153] анализировалось поведение нержавеющей стали 12Х18Н10Т в кислых средах (1%-ном растворе соляной кислоты HCl) при комнатной температуре после облучения НСЭП с различным числом импульсов N (от 1 до 100). При одиночном импульсе на поверхности возникали кратеры в местах расположения сульфидных и карбидных включений, способных образовывать легкоплавкие эвтектики. При повторном облучении при испарении этих вредных включений происходила очистка (рафинирование) поверхности, и образовывалась субзеренная структура с размером зерна ~ 100 нм. При $\Phi = 5 \text{ Дж см}^{-2} \text{ имп.}^{-1}$ и $N = 100$ поверхность полностью очищалась от примесей, ее рельеф сглаживался, а кратеры исчезали. Характеристики анодных поляризационных кривых с ростом Φ улучшаются, так как существенно возрастает скорость испарения (рис. 20а). С увеличением N ток анодного растворения уменьшался при росте стационарного потенциала. Затем последний становился положительным, а ток растворения уменьшался на два порядка по сравнению с исходным. Значительного перераспределения примесей (Cr, Ni и Ti) в зоне облучения не обнаружено. Следовательно, определяющую роль

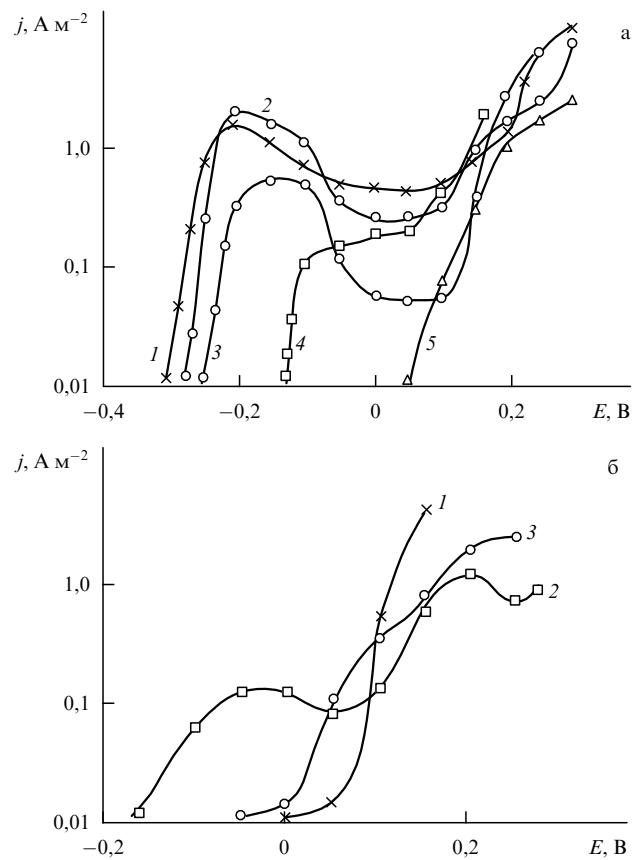


Рис. 20. Анодные поляризационные кривые для стали 12Х18М10Т в 1%-ном растворе HCl после облучения НСЭП в различных режимах. Без предварительного нанесения пленки Та: 1 — исходное состояние; 2 — $\Phi = 2 \text{ Дж см}^{-2} \text{ имп.}^{-1}$, число импульсов $N = 1$; 3 — $5 \text{ Дж см}^{-2} \text{ имп.}^{-1}$, $N = 1$; 4 — $5 \text{ Дж см}^{-2} \text{ имп.}^{-1}$, $N = 20$; 5 — $5 \text{ Дж см}^{-2} \text{ имп.}^{-1}$, $N = 100$ (а). С предварительным нанесением пленки Та (100 нм) и облучением одиночным импульсом: 1 — $3,5 \text{ Дж см}^{-2} \text{ имп.}^{-1}$; 2 — $4,5 \text{ Дж см}^{-2} \text{ имп.}^{-1}$; 3 — $5,3 \text{ Дж см}^{-2} \text{ имп.}^{-1}$ (б).

в повышении коррозионной стойкости играет очистка поверхности от вредных примесей и формирование субзеренной структуры с высокой степенью химической гомогенности.

Подобный эффект был получен, когда поверхность этой же стали сначала покрывалась пленкой Та толщиной 0,1 мкм, а затем облучалась импульсом НСЭП (рис. 20б). Причиной увеличения коррозионной стойкости является перемешивание Та с железом с образованием превращений, описанных в разделе 4. Наилучший режим обработки получен при флюенсе $3,5 \text{ Дж см}^{-2} \text{ имп.}^{-1}$. Повышение прочностных свойств и коррозионной стойкости в водяном паре удалось достичь путем предварительного нанесения на поверхность железа тонких (0,1 мкм) тугоплавких пленок Та, Mo и V и последующего облучения одиночными импульсами НСЭП [101, 107]. Такие же результаты наблюдались при многократном ($N > 50$) облучении ($\Phi = 5 \text{ Дж см}^{-2} \text{ имп.}^{-1}$), но без предварительного нанесения пленки Та. Известно, что чистый tantal образует стабильный, плотный, прочно прикрепленный окисный слой в окисляющих кислотах, но его растворимость в железе слишком мала (до 0,5 %) для формирования защитного слоя при использовании обычных методов получения сплавов. Перемешивание с

помощью облучения НСЭП Та с железом создает аморфную пленку, увеличивающую коррозионную стойкость.

Исследование воздействий СЭП и МИП на α -Fe, являющееся основой для большинства сталей и сплавов, позволило определить оптимальные режимы обработки, обеспечивающие максимальное повышение его прочностных и триботехнических свойств (см. разделы 2 и 3).

Уменьшение износа при сухом трении обнаружено не только на поверхностях образцов сталей, меди и бериллия, облученных МИП, но и на глубинах, на порядки превышающих пробег ионов пучка [10, 69]. Оно обусловлено образованием дефектной структуры в ударной волне и возникновением остаточных сжимающих напряжений.

Авторы [148] получили хорошие результаты по обработке стали AISI-4620 (состав: > 96,3 вес. % Fe, 0,2 % C, 0,55 % Mn, 1,8 % Ni, 0,3 % Si, 0,25% Mo, < 0,04 % S, < 0,04 % P), применяемой для производства зубчатых передач, посредством варьирования значений Φ и N на ускорителе ANACONDA (ионы H, C, O; 350 кэВ; 30 кА; 1000 нс; 1 имп. в 3 мин). В приповерхностном слое формировались две неоднородные зоны: зона плавления толщиной 0,2–1 мкм и зона теплового влияния (1–5 мкм). После обработки ($\Phi = 5$ Дж см^{-2} имп. $^{-1}$, $N = 10$) твердость по Кнутпу возрастает в 1,4 раза до величины 466 ± 30 кГ мм^{-2} , что вызывается измельчением зерен и образованием дислокаций. В этой же работе продемонстрировано изменение микротвердости по Виккерсу после обработки МИП быстрорежущей инструментальной стали Р18 (вес.%: 75 Fe, 0,7 C, 4 Cr, 1,8 W, 1 Mo, 1,2 V), используемой в производстве сверл, резцов, фрез и др., на технологическом ускорителе ТЕМП (ионы углерода, 300 кэВ, 20 кА, 50 нс, 0,3 Гц). До обработки образцы отжигались при 1270 °C и подвергались отпуску при 570 °C для получения мартенситной фазы с карбидами $\text{Fe}_3\text{W}_6\text{C}$. Быстрый отжиг при облучении увеличивал концентрацию точечных дефектов и дислокаций на поверхности. Последующая обработка (455 °C, 1 ч) проводилась для стабилизации фаз. Оптимальный режим обработки, соответствующий максимальной микротвердости, получен при $\Phi = 1,5$ Дж см^{-2} имп. $^{-1}$ и $N = 2$. Облучение ($\Phi = 1,2$ Дж см^{-2} имп. $^{-1}$, $N = 5$) заклепок из стали У10А (> 98 % Fe, 1 % C, 0,25 % Ni, < 0,15 % W, < 0,35 % Si, < 0,02 % P, < 0,02 % S) приводило к заполировыванию их поверхности и увеличению ресурса работы в 4,5 раза [148].

Режущие инструменты из карбида вольфрама (WC в связке с 5–8 % Co) были обработаны на ускорителе ТЕМП (1,6 Дж см^{-2} имп. $^{-1}$, $N = 1$). Шероховатость поверхности снижалась от 1,8 до 1,3 мкм, однако с ростом N она увеличивалась. Наилучшая обработка достигалась при комплексном режиме облучения, включающем: а) одиночный импульс ($\sim 0,4$ Дж см^{-2} имп. $^{-1}$) для очистки поверхности; б) последующие несколько импульсов ($\sim 0,9$ Дж см^{-2} имп. $^{-1}$) для уменьшения кристаллизации; в) несколько заключительных импульсов ($\sim 0,4$ Дж см^{-2} имп. $^{-1}$) для полировки поверхности. Наилучший эффект был получен для сверл — ресурс их работы возрастал при более высоком качестве получаемых отверстий. Повышение износостойкости вызывается увеличением содержания твердого раствора W в Co в приповерхностном слое. После обработки МИП возрастала и износостойкость титанового сплава T14K8

(WC с 14 % TiC и 8 % Co), обусловленная образованием областей, содержащих нанофазные частицы Co_3Ti с размерами зерен 20–30 нм [148].

Широкомасштабная технология обработки с помощью МИП резцов из сплавов Т5К8 и Т5К10 (WC с 5 % TiC соответственно с 8 и 10 % Co) реализована на автозаводе в Нижнем Новгороде. Одновременно облучалось 96 резцов, расположенных на врачающейся карусели в вакуумной камере ускорителя ТЕМП. Затем проводился отжиг, после которого их износостойкость возрастала в $2,8 \pm 0,4$ раза [148].

Поверхностная обработка путем облучения МИП тугоплавких сплавов на основе Ti и Fe–Ni–Cr (применимых в производстве лопаток компрессоров газотурбинных авиационных двигателей) [98, 148, 154, 155] проводилась на ускорителях ТОНУС, ВЕРА, ТЕМП, ТЕМП-М, МУК и ЛУЧ, причем четыре последних были разработаны для технологических целей. Они обеспечивали режимы облучения с параметрами: ионы углерода и 30–40 % протонов; 100–300 кэВ; 40–500 А см^{-2} ; 50–100 нс; частота импульсов 0,2–10 Гц; площадь обработки 60–1000 см^2 . Испытывались титановые сплавы BT18У, BT9, BT8М, BT25У, BT33, сплав никеля ЭП718ИД, сталь ЭП866Ш и лопатки компрессоров, изготовленных по стандартной технологии. После облучения образцы и лопатки отжигались для структурно-фазовой стабилизации материала в приповерхностном слое. Модификации обусловлены протеканием следующих процессов: а) образование газоплазменного облака; б) поверхностное плавление, газодинамический разлет компонентов плазмы и распространение ударной волны (при $j > 100$ А см^{-2}); в) адсорбция газа в жидкую fazу во время охлаждения, высокоскоростная кристаллизация (10^7 – 10^9 К с^{-1}) и осаждение компонент аблационной плазмы на поверхность после облучения. Толщина слоя, удаленного при аблации, составляла 0,2–0,4 мкм, а оставшийся поверхностный слой толщиной 0,2–0,3 мкм содержал мелкие включения карбидов и оксикарбидов. При толщине расплавленного слоя 1–2 мкм дефекты наблюдались на глубине более 10 мкм. После облучения серией импульсов ($N = 100$) наблюдалось перераспределение элементов, приводящее к изменению состава и измельчению упрочняющих фаз. Важным оказалось правильный выбор режимов облучения (прежде всего Φ и N). Например, при $\Phi = 1$ Дж см^{-2} имп. $^{-1}$ в некоторых сплавах образовывались кратеры и приповерхностные трещины, снижающие усталостную прочность материала. Авторам удалось, используя определенное сочетание Φ и N , залечить такие дефекты и получить режимы обработки, значительно уменьшающие шероховатость поверхностей лопаток от 0,20–0,25 мкм до 0,06–0,1 мкм. Это улучшало качество поверхности, один из главных факторов, определяющих коррозионную и эрозионную стойкость материала. Кроме того, обнаружено, что последующая за облучением тепловая обработка при 300–600 °C отжигает дефекты и снижает остаточные растягивающие напряжения, а образующие преципитаты упрочняют материал.

Это подтверждают полученные по результатам испытаний усталостные кривые. Одна из них для сплава BT18У приведена на рис. 21. Усталостная прочность в широком интервале циклов нагружения (10^6 – 10^9) возрасала на 30–180 %. Подобная обработка также увеличивала коррозионную стойкость образцов в воздухе в 2–

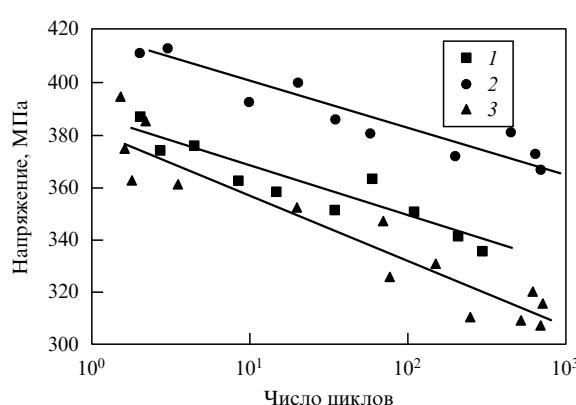


Рис. 21. Усталостные кривые для лопаток из сплава BT18U после наработки в течение 660 ч на двигателе при частоте нагрузки 3300 Гц и температуре 500 °C: 1 — исходное состояние; 2 — после облучения НСЭП ($140-150 \text{ A cm}^{-2}$, $N \geq 3$) и отжига (550°C , 2 ч); 3 — после облучения НСЭП без отжига.

3 раза и сопротивление солевой коррозии в морской воде в 6–8 раз. На рисунке 22 представлены диаграммы испытаний трех партий лопаток (по 70 штук в каждой): необработанных, обработанных МИП и обработанных МИП с последующим отжигом. Определены оптимальные режимы облучения и отжига для сплавов с составами в вес. %: ЭП866Ш (72 Fe, 16,5 Cr, 5,5 Co, 2,1 Ni, 1,6 Mo, 1,0 W, 0,6 Si, 0,3 Nb), BT8M (89,9 Ti, 5,9 Al, 3,7 Mo, 0,28 Si, 0,18 Fe), BT9 (86 Ti, 7 Al, 3,8 Mo, 2,5 Zr, 0,35 Si, 0,25 Fe) и BT18U (основа Ti, 6,3 Al, 3,4 Mo, 0,2 Fe, 4,5 Zr, 1,5 Nb, 0,25 Si, 3,0 Sn). Поэтому эта технология может иметь хорошие перспективы в производстве авиационных двигателей.

Недавно СЭП нашли применение для удаления окислов азота из газовой смеси [156]. При облучении смеси NO (< 2 мол. %) с N₂ СЭП ($\leq 160 \text{ кэВ}$, 700 нс, 2 A cm^{-2} , $12,6 \pm 0,4 \text{ Дж см}^{-2} \text{ имп.}^{-1}$) была достигнута высокая

эффективность удаления NO (до 1100 нмоль Дж⁻¹), что может найти применение в металлургии для удаления остаточных газов при особо чистой плавке металлов.

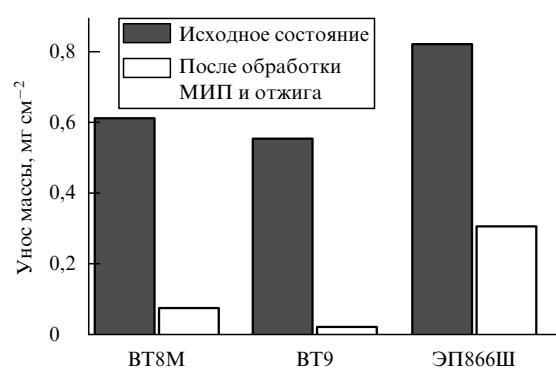
9. Заключение

Мы рассмотрели одно из современных и перспективных направлений развития физики твердого тела и радиационного материаловедения — воздействие концентрированных потоков энергии высокоинтенсивных импульсных электронных и ионных пучков на твердые материалы. Они создают такие сверхплотные коллективные возбуждения электронной и атомной подсистем твердых тел, которые при трансформации их энергии вызывают уникальные структурно-фазовые превращения, невозможные при других видах воздействия, включая ионную имплантацию и лазерное облучение. В физике высоких плотностей энергии появился удобный инструмент для проведения фундаментальных исследований в новых направлениях, таких как получение и изучение свойств плотной плазмы, неравновесные фазовые переходы первого и второго рода, протекающие в мощных радиационных, тепловых и механических полях, моделирование процессов в треках тяжелых заряженных частиц и др. Результаты экспериментов способствовали формированию современных представлений о физической природе взаимодействия интенсивных пучков частиц с веществом. Часть из них положена в основу новых экспериментальных методов анализа, например, диагностики характеристик интенсивного излучения по параметрам генерируемой аблационной плазмы.

Ограниченный спектр свойств твердых материалов является основной причиной, сдерживающей успешное развитие технологий их обработки. Интенсивные пучки сейчас обеспечивают хорошие модификации уже имеющихся свойств, а также создают некоторые новые уникальные свойства. На широком классе металлов, сплавов и изделий из них продемонстрировано реальное улучшение таких эксплуатационных характеристик, как износстойкость, усталостная прочность при длительных циклических нагрузках, коррозионная и эрозионная стойкость. Улучшение этих характеристик значительно повышает надежность и ресурс работы изделий. Хорошие результаты дают комплексное сочетание химико-термических методов, ионной имплантации и интенсивного облучения. Например, наши предварительные исследования по так называемой дуплексной обработке сплавов Ti–V–Al включали предварительную имплантацию их поверхности ионами Fe и Zr и последующее облучение СЭП [157]. В результате в несколько раз повышалась микротвердость и износстойкость их поверхностных слоев.

Хорошие перспективы имеет реализация некоторых ресурсосберегающих технологий, включающая предварительное легирование поверхностных слоев обрабатываемых металлов аморфными материалами [71, 92], тугоплавкими [101] и благородными [92] металлами.

Специальными методами осаждения аблационной плазмы удалось получить тонкие пленки с хорошими электрическими, магнитными и оптическими свойствами, высокопрочные алмазоподобные покрытия и ультрадисперсные наноразмерные порошки. На наш взгляд, это направление будет наиболее интенсивно развиваться в ближайшее время.



$j, \text{ см}^{-2}$	120–240	60–80	60–80
Число импульсов	3	3	3
$T, ^\circ\text{C}$	500	500	600
Число циклов в морской воде	150	150	200

Рис. 22. Влияние обработки МИП на сопротивление солевой коррозии в морской воде для стали ЭП866Ш и титановых сплавов BT8M и BT9.

Достаточно высокая воспроизводимость результатов эксперимента при высокой производительности и эффективности процессов модификации в сочетании с относительно небольшими затратами стимулировала разработку новых способов обработки материалов, часть из которых уже нашла применение в промышленных технологиях. Тем самым успешно решаются некоторые задачи радиационного материаловедения по получению материалов для ядерной энергетики, аэрокосмической промышленности, машиностроения, микроэлектроники и др. [158, 159]. Поэтому в некоторых случаях МИП и СЭП могут быть хорошей альтернативой ионной имплантации и лазерному облучению.

Здесь мы попытались наиболее полно осветить затронутые проблемы как с научной точки зрения, так и в плане их промышленного применения, основываясь на наиболее значимых, на наш взгляд, результатах как мировых, так и собственных исследований. Физика взаимодействия высокointенсивных пучков с металлами по возможности рассмотрена на атомном, микро- и макроуровнях. Структурно-фазовые превращения, обусловливающие наблюдаемые модификации всех свойств твердых материалов, проанализированы на основе единой концепции трансформации энергии облучения в веществе, определяемой тремя основными факторами: а) видом и параметрами интенсивных пучков частиц; б) исходными характеристиками вещества; в) параметрами среды облучения. Используя определенные их сочетания, можно добиться желаемой модификации свойств.

Сейчас случайные (до некоторой степени) эксперименты уступают место систематическим, а мировые исследования в данном направлении характеризуются резкой интенсификацией работ, что подтверждается материалами традиционных тематических международных конференций.

Несмотря на большой класс исследуемых материалов, видов и режимов облучений, можно выделить следующие общие черты наблюдаемых эффектов и процессов:

1) они определяются коллективным сверхплотным возбуждением электронной и атомной подсистем твердых тел;

2) большинство из них наблюдается при интенсивностях и флюенсах, превышающих некоторые критические значения (хрупкое разрушение твердых тел с помощью СЭП, аномальное глубинное упрочнение металлов под воздействием МИП, аблация вещества при облучении и др.);

3) их особенности определяются комплексным воздействием генерируемых интенсивных радиационных, тепловых и механических полей, обусловливающих протекание существенно неравновесных фазовых переходов первого и второго рода;

4) они являются высокоскоростными, так как характерные времена определяющих их процессов составляют $10^{-8} - 10^{-5}$ с;

5) они происходят как в облученной, так и необлученной области, причем в последнем случае наблюдаемые эффекты дальнодействия связаны со специфическим воздействием на структуру упругих, упругопластических ударных волн.

В последнее время эффектам дальнодействия в различных областях физики уделяется большое внимание.

Некоторые из них, представленные в обзоре, относятся к структурно-фазовым превращениям материалов на больших глубинах. Они находят подтверждение в работах различных мировых исследовательских центров, выполненных на широком классе материалов при облучении на разных ускорителях. Здесь в теоретическом аспекте, на наш взгляд, важно решение задачи по разделению вкладов энергии облучения на аблацию плазмы и генерирование волн в мишени. Эти процессы описываются одними и теми же уравнениями распространения волн с разными уравнениями состояния для плазмы и твердого тела. Отсутствие в настоящее время удовлетворительной теории неравновесных фазовых переходов при облучении существенно затрудняет аналитическое описание.

Остановимся на некоторых общих недостатках рассмотренных работ. Если сравнить уровень экспериментальных исследований с их теоретической интерпретацией, то следует отметить, что физическая картина наблюдаемых явлений еще далека от их полного понимания. При разработке моделей иногда делаются довольно грубые предположения и допущения, часто приводящие к расхождению экспериментальных и расчетных результатов. И, хотя выбор допущений на данном этапе обычно достаточно обоснован, проблема остается. По нашему мнению, это связано со следующими факторами.

Во-первых, это сложность, многообразие и взаимосвязь одновременно происходящих явлений, что существенно затрудняет их представление в виде элементарных актов и процессов. Уже на первой стадии их интерпретации необходимо знать начальный профиль поглощенной энергии, который во всех расчетах оценивался по суммарному энерговкладу отдельных частиц. По известным причинам такое условие для интенсивных пучков трудно обосновать.

Во-вторых, уникальность этих явлений значительно затрудняет поиск аналогов и подходящих моделей для их описания.

В-третьих, исследования в данном направлении начались недавно и проводятся в сравнительно небольшом числе мировых центров.

Два первых фактора имеют принципиальный характер.

В настоящем обзоре мы ограничились рассмотрением вопросов модификации свойств металлических материалов. Однако СЭП успешно применяются, например, для улучшения электрических свойств изоляции, резки и разрушения твердых пород, проходки туннелей в горных массивах, стерилизации медицинских инструментов, обработки воды и пищевых продуктов. Это дополнительно подтверждает важность таких исследований, делает необходимой их более широкую трактовку и ускоренное решение отмеченных проблем.

Мы попытались отразить здесь мировые тенденции развития данного направления, имеющего большой потенциал как в научном плане, так и в сопутствующих новых технологиях, и ожидаем, что в дальнейшем интерес к затронутым здесь проблемам будет по-прежнему нарастать.

Авторы благодарят D. Rej, B. Wood, H. Davis, K.C. Walter (Los-Alamos National Lab.), T. Renk, D. Follstaedt, J. Knapp, R. Buchett (Sandia National Lab.), R. Stinnett (Quantum Manufacturing Technologies, USA), K. Yatsui (Nagaoka University of Technology, Japan)

за предоставленные научные материалы, обсуждение отдельных результатов на семинарах лабораторий, плодотворную дискуссию и критические замечания, что значительно обогатило содержание обзора. Мы также признательны Д.И. Прокуровскому, В.П. Ротштейну и сотрудникам лаборатории вакуумной электроники ИСЭ РАН (Томск), а также Г.Е. Ремневу и В.А. Шулову за помощь в проведении экспериментов и обсуждение результатов.

Работа частично финансировалась ГКНТ Украины, проекты 7.5.4/73-93 "Радуга" и 005К/95.

Список литературы

1. Келдыш Л В, в сб. *Труды межд. конф. по физике полупроводников* (М., 1968) с. 1307
2. Ашкниадзе Б М, Зиновьев Н Н, Фишман И М *ЖЭТФ* **70** 678 (1976)
3. Oswald R B *IEEE Trans. Nucl. Sci.* **NS-13** 63 (1966)
4. Steverding B et al. *J. Phys. D* **4** 54 (1971)
5. Steverding B et al. *J. Appl. Phys.* **43** 3217 (1972)
6. Avery R T, Keefe D *IEEE Trans. Nucl. Sci.* **NS-20** 1010 (1973)
7. Avery R T, Keefe D, in *Proc. Intern. Conf. "Electron Beam Research and Technology"* New Mexico, USA Vol. 11 (1975) p. 61
8. Valyaev A N *Nucl. Instrum. Methods B* **141** 555 (1998)
9. Pogrebnyak A D, Rusimov Sh M *Phys. Lett. A* **120** 259 (1987)
10. Pogrebnyak A D et al. *Phys. Lett. A* **123** 410 (1987)
11. Nakagava Y et al. *Japan J. Appl. Phys.* **27** L719 (1988)
12. Nakagava Y et al. *Nucl. Instrum. Methods B* **39** 603 (1989)
13. Rej D J et al. *Nucl. Instrum. Methods B* **127/128** 987 (1997)
14. Итин В И и др., в сб. *Физика износостойкости поверхности металлов* (Л.: Наука, 1988) с. 119
15. Иванов Ю Ф, Лыков С В, Ротштейн В П *ФХОМ* **5** 62 (1993)
16. Yatsui K et al., in *Proc. 10th Intern. Conf. "High Power Particle Beams"* (San-Diego, USA, 1994) p. 27
17. Davis H A et al. *MRS Bulletin* **21** 58 (1996)
18. Davis H A et al. *Mater. Chem. Phys.* **54** 213 (1998)
19. Рудаков Л И, Демидов В А, Углов В С *ФХОМ* **4** 11 (1989)
20. Engelko V I, Lazarenko A V, Pechersky O P, in *Proc. 9th Intern. Conf. High Power Particle Beams, Washington* Vol. 3 (1992) p. 1035
21. Proskurovsky D I et al. *Vac. Sci. Tech. A* **16** 2480 (1998)
22. Itin V I et al., in *Proc. Intern. Conf. "Energy Pulse and Particle Beams Modification of Materials"* Dresden, 1989 Vol. 13 (Berlin: Phys. Res., 1990) p. 331
23. Steverding B, Lehning S H J. *Appl. Phys.* **42** 3231 (1971)
24. Steverding B, Lehning S H J. *Appl. Phys.* **45** 3507 (1974)
25. Бойко В И и др. *ФХОМ* **1** 29 (1992)
26. Бойко В И и др. *ФХОМ* **5** 28 (1993)
27. Boiko V I et. al. *Phys. Status Solidi A* **128** 369 (1991)
28. Акерман А Ф и др. *ЖЭТФ* **89** 852 (1985)
29. Shimotori Y et al. *J. Appl. Phys.* **63** 968 (1988)
30. Yatsui K et al. *Appl. Phys. Lett.* **67** 1214 (1995)
31. Shimotori Y, Yakayama M, Harada Sh *Appl. Phys.* **28** 469 (1988)
32. Yatsui K et al. *Phys. Plasmas* **1** 1730 (1994)
33. Ремнев Г Е и др. *Письма в ЖТФ* **22** 68 (1996)
34. Yatsui K et al., in *Proc. 11th Intern. Conf. "High Power Particle Beams"* Vol. 1 (Prague, 1996) p. 262
35. Yatsui K *Laser and Particle Beams* **7** 733 (1989)
36. Davis H A et al., in *Proc. 10th Intern. Conf. "Ion Beam Modification of Materials"* (Albuquerque, 1996) p. 226
37. Gauter D S et al. *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.* **279** 657 (1993)
38. Valyaev A N, in *Proc. Intern. Conf. "Energy Pulse and Particle Beams Modification of Materials"* Dresden, 1989 Vol. 13 (Berlin: Phys. Res., 1990) p. 558
39. Sudan R N, in *Inertial Confinement Fusion* (Eds A Caruso, E Singoni) (Intern. School of Plasma Physics "Pierro Cardiolla" Varenna) (Bologna: Ital. Phys. Soc., 1989) p. 453
40. Van Devender J P *Plasma Phys. Controlled Fusion* **28** 841 (1986)
41. Воздействие концентрированных потоков энергии на материалы (Под ред. Н Н Рыкалева) (М.: Наука, 1985)
42. Рыкалев И Н и др. *Лазерная и электронно-лучевая обработка материалов. Справочник* (М.: Машиностроение, 1985)
43. *Модифицирование и легирование поверхности лазерными, ионными и электронными пучками* (Под ред. Дж М Поута, Г Фоти, Д К Джекобсона) (М.: Машиностроение, 1987)
44. Быковский Ю А, Неволин В Н, Фоминский В Ю *Ионная и лазерная имплантация металлических материалов* (М.: Энергоатомиздат, 1991)
45. Donaldson E G *British Foundman F* **1540** 262 (1986)
46. Епифанов А С, Маненков А А, Прохоров А М *ЖЭТФ* **70** 728 (1976)
47. Бойко В И, Евстигнеев В В *Введение в физику взаимодействия сильноточных пучков частиц с веществом* (М.: Энергоатомиздат, 1988)
48. Hewett C A et al. *Phys. Status Solidi A* **84** 49 (1984)
49. Иванов Ю Ф и др. *Изв. РАН. Сер. Металлы* **3** 140 (1993)
50. Иванов Ю Ф и др. *ФММ* **75** (5) 103 (1993)
51. Иванов Ю Ф и др. *ДАН СССР* **321** (6) 1192 (1991)
52. Лыков С В и др. *ДАН СССР* **310** (4) 858 (1990)
53. Марков А В, Прокуровский Д И, Ротштейн В П, Препринт Томского научного центра СО РАН № 17 (Томск: НЦ СО РАН, 1993) с. 63
54. Zecca A et al. *Phys. Lett. A* **175** 433 (1993)
55. Fastow R, Mayer J W J. *Appl. Phys.* **61** 184 (1987)
56. Stinnett R W et al. *Mater. Res. Soc. Symp. Proc.* **316** 521 (1994)
57. Шулов В А и др. *Письма в ЖТФ* **17** 38 (1991)
58. Вайсбурд Д И и др. АС № 549046 МКИ H01 L21/263 (Приоритет от 25.09.75)
59. Grace F I J. *Appl. Phys.* **40** 2649 (1969)
60. Беспалов В И и др., в сб. *Сильноточные импульсные электронные пучки в технологии* (Новосибирск: Наука, 1983) с. 55
61. Baglin J E et al. *Appl. Phys. Lett.* **37** 187 (1980)
62. Pogrebnyak A D et al. *Phys. Lett. A* **241** 357 (1998)
63. Погребняк А Д и др. *ФХОМ* **1** 29 (1996)
64. Puska M V, Nieminen R J. *Phys. F* **12** 211 (1982)
65. Веригин А А, Крючков Ю Ю, Погребняк А Д *Поверхность* **9** 106 (1988)
66. Pogrebnyak A D et al. *Phys. Status Solidi A* **123** 119 (1991)
67. Pogrebnyak A D et al. *Phys. Lett.* **141** 204 (1989)
68. Зам П Р, Штурм И С, в кн. *Космическое машиностроение* (Под ред. Б Фойердаха и др.) (М.: Мир, 1989) с. 143
69. Валяев А Н, Погребняк А Д, Плотников С В *Радиационно-механические эффекты в твердых телах при облучении высоконапряженными импульсными электронными и ионными пучками* (Алма-Ата: Гылым, 1998)
70. Pakk Y K et al. *Phys. Rev. B* **34** 823 (1986)
71. Погребняк А Д и др. *Изв. вузов. Сер. Физика* **1** 52 (1987)
72. Mogilevsky M A *Phys. Rep.* **97** 357 (1986)
73. Murr L E, Gray G T, in *High Pressure Shock Compression of Solids* (Ed. J R Asay) (New-York: Springer, 1993) p. 187
74. Saarien K et al. *Phys. Rev. B* **39** 5287 (1989)
75. Pogrebnyak A D et al., in *Proc. Intern. Conf. "Energy and Particle Beams Modification of Materials"* Dresden, 1989 Vol. 13 (Berlin: Phys. Res., 1990) p. 308
76. Лаврентьев В И, Погребняк А Д, Шандрик Р *Письма в ЖЭТФ* **65** 618 (1997)
77. Валяев А Н и др. *Письма в ЖТФ* **24** 47 (1998)
78. Pogrebnyak A D et al. *Surf. Coating Technol.* **111** 46 (1999)
79. Фелдман Л, Майер Дж, в кн. *Основы анализа поверхности тонких пленок* (М.: Мир, 1989) с. 207
80. Didenko A N et al. *Phys. Status Solidi A* **89** 167 (1985)
81. Хирвонен Дж К, в кн. *Ионная имплантация* (М.: Металлургия, 1985) с. 391
82. Kang X, Masugata K, Yatsui K *Laser Part. Beams* **13** 201 (1995)
83. Янушкевич В А *ФХОМ* **5** 9 (1975)
84. Иванов Л И, Мезох З И, Янушкевич В А *ФХОМ* **1** 38 (1977)
85. Иванов Л И, Янушкевич В А, в кн. *Физика и химия плазменных металлургических процессов* (М.: Наука, 1985) с. 173
86. Янушкевич В А и др. *Изв. АН СССР. Сер. Физика* **49** 1146 (1985)
87. Янушкевич В А *ФХОМ* **2** 47 (1979)
88. Murr L E *Scripta Met.* **12** 201 (1978)
89. Могилевский М А Автореф. дис. ... д-ра физ.-мат. наук (Новосибирск: ИГ СО АН СССР, 1986)
90. Valyaev A N, Nazarov Yu K, Pogrebnyak A D, in *Proc. Intern. Conf. "Ion Implantation and Ion Beam Equipment"* Elenite, Bulgaria, 1990 (Singapore: World Scientific, 1990) p. 418
91. Зельдович Я Б, Райзер Ю П *Физика ударных волн и высокотемпературных гидродинамических явлений* (М.: Наука, 1966)
92. Валяев А Н и др., Патент Республики Казахстан № 4954 Бюл. № 3 (Приоритет от 15.08.97)
93. Renk T et al., Sandia Reports SAND-2101 (New Mexico: Sandia Natl. Lab, 1998); Renk T et al. *Phys. Plasmas* **5** 2144 (1998)
94. Russel T, Hallouin M J. *Appl. Phys.* **84** 1932 (1998)

95. Fastow R, Maron Y, Mayer J *Phys. Rev. B* **31** 893 (1985)
96. Bojarko Yu E et al. *Nucl. Instrum. Methods B* **17** 162 (1986)
97. Pogrebnyak A D, Remnev G E, Plotnikov S V *Mater. Sci. Eng. A* **115** 175 (1989)
98. Remnev G E, Shulov V A *Laser Part. Beams* **11** 707 (1993)
99. Koishibaev R G et al., in *Proc. 2nd Intern. Conf. "Electron Beam Technol."* (Varna, 1988) p. 751
100. Банных О А, Будберг Р Б, Амкова С Л *Диаграмма состояний двойных и многокомпонентных систем на основе железа*. Справочник (М.: Металлургия, 1986)
101. Pogrebnyak A D et al. *Surf. Coating Technol.* **99** 99 (1997)
102. Батурина А А и др., Препринт Института сильноточной электроники СО АН СССР № 21 (Томск: НЦ СО АН СССР, 1991)
103. Александров Л Е *Кинетика кристаллизации и перекристаллизации тонких пленок* (М.: Наука, 1985)
104. Wood R E, Gilee G E *J. Thermal Transp. Melting* **23** 2923 (1987)
105. Кривобоков В П, Пащенко О В *ЖТФ* **61** 188 (1991)
106. Pogrebnyak A D et al. *Nucl. Instrum. Methods B* **36** 286 (1988)
107. Погребняк А Д и др. *Металлофизика и новейшие технологии* **19** 38 (1997)
108. Пфранно Дж В *Зонная плавка* (М.: Мир, 1930)
109. Belyuk S V et al., in *Proc. 2nd Intern. Conf. "Electron Beam Technol."* Vol. 3 (Varna, 1998) p. 595
110. Диценко А Н, Кривобоков В П *ЖТФ* **58** 2002 (1988)
111. Кривобоков В П, Пащенко О В, Сапульская Г А *ЖТФ* **64** 37 (1994)
112. Асанов О Х и др. *ФХОМ* **2** 53 (1987)
113. Pogrebnyak A D *Phys. Status Solidi A* **117** 17 (1990)
114. Bataglin G et al. *J. Phys. (Paris)* **44** 209 (1983)
115. Bataglin G et al. *Thin Sol. Films* **145** 147 (1986)
116. Бокштейн Б Е *Диффузия в металлах* (М.: Металлургия, 1978)
117. Гордеев А В, Рудаков Л И *ЖЭТФ* **83** 2048 (1982)
118. Диценко А Н и др. *Письма в ЖТФ* **13** 526 (1987)
119. Жуков А В *ЖПМ ТФ* **5** 112 (1986)
120. Олемская А И, Погребняк А Д, Шульженко В Н *Изв. вузов. Сер. Физика* **2** 110 (1993)
121. Ландау Л Д, Лившиц Е М *Гидродинамика* (М.: Наука, 1988)
122. Чистяков С А, Халиков С В, Яловец А П *ЖТФ* **63** 31 (1993)
123. Rej D I et. al. *Rev. Sci. Instrum.* **64** 2753 (1993)
124. Wood R W, Gilee G E *Phys. Rev.* **23** 2923 (1981)
125. Баллуфи Р В, Кинн А Г *Фазовые превращения при облучении* (Под ред. В Ф Нолфи) (М.: Металлургия, 1989)
126. Уилкинс М Л *Расчет упругопластических течений. Вычислительные методы в гидродинамике* (Под ред. Б Олзера, С Фернбаха, М Ротенберга) (М.: Мир, 1967)
127. Кононов Б А, Степанов Ю М, Яловец А П *Атомная энергия* **42** 326 (1977)
128. Chistjakov S A, Pogrebnyak A D, Remnev G E *Nucl. Instrum. Methods B* **42** 342 (1989)
129. Linlop W I *Appl. Phys. Lett.* **3** 210 (1963)
130. Isenov N R *Appl. Phys. Lett.* **4** 152 (1964)
131. Ehler A W J. *Appl. Phys.* **37** 4262 (1966)
132. Basov N G, Krokhin O G, Skliskov G V *IEEE J. Quantum Electron. QE-4* 988 (1968)
133. Hora H *Ann. Phys.* **22** 402 (1969)
134. Hora H et. al. *Z. Naturforsch. A* **22** 278 (1967)
135. Yatsui K et al. *Laser Inter. Related Plasma Phen.* **10** 567 (1993)
136. Kang X, Katsumi K, Yatsui K *Jpn. J. Appl. Phys.* **33** Pt. 2 L1041 (1994)
137. Kang X, Masugata K, Yatsui K, in *Proc. 10th Intern. Conf. Ion Beam Modification of Materials* (Albuquerque, USA, 1996) p. 244
138. Gauthier D C et al. *Mater. Res. Soc. Symp. Proc.* **279** 657 (1993)
139. Rej D J et al., in *Proc. 9th Intern. Conf. on High Power Particle Beams* (Washington, 1992) p. 34
140. Rej D J et al., in *Proc. 3rd Intern. Conf. on Applications of Diamond Films and Related Materials* (Caithersburg, USA, 1995) p. 723
141. Siegel R W *MRS Bulletin* **15** 60 (1990)
142. Muller G, Schultheiss C, in *Proc. 10th Intern. Conf. on High Power Particle Beams* (San-Diego, 1994) p. 833
143. Sonegawa T et al. *Appl. Phys. Lett.* **69** 1 (1996)
144. Kamihata S et al., in *Proc. 8th Intern. Conf. on High Power Particle Beams* (Novosibirsk, 1990) p. 35
145. Dyer P E *Appl. Phys. Lett.* **55** 1630 (1989)
146. Olson J C et al. *Mater. Res. Soc. Symp. Proc.* **388** 171 (1996)
147. Remnev G E et al., in *Proc. 11th Intern. Conf. on High Power Particle Beams* (Prague, 1996) p. 873
148. Rej D J et al. *J. Vac. Sci. Technol. A* **15** 1089 (1997)
149. Kang X, Masugata K, Yatsui K *Jpn. J. Appl. Phys. Pt. 2* **33** L1155 (1994)
150. Grigoriu C, Yatsui K, in *Proc. Symp. on Physics, Diagnostic Applications of Pulsed High Energy Density Plasma as an Extreme State* (Ed. K Isii) (Nagoya: Nat. Inst. Fusion Sci., 1996) p. 25
151. Melic C A et al. *J. Vac. Sci. Technol. A* **13** 1182 (1995)
152. Pogrebnyak A D, in *Proc. 10th Intern. Conf. on High Power Particle Beams* (San-Diego, 1994) p. 232
153. Гончаренко И М и др. *Защита металлов* **29** 932 (1993)
154. Shulov V A et al. *Surf. Coating Technol.* **99** 74 (1998)
155. Shulov V A, Nochovnaya N A, Remnev G E *Mater. Sci. Eng. A* **243** 290 (1998)
156. Nakagawa Y, Kawauchi H, in *Proc. 12th Intern. Conf. on High Power Particle Beams* (Haifa, 1998) p. 7.22
157. Pogrebnyak A D et al. *Japan. J. Appl. Phys.* **38** L248 (1999)
158. Регель В Р, Слуцкер А И, Томашевский Э Е *Кинетическая природа прочности твердых тел* (М.: Наука, 1976)
159. Самсонидзе Г Г, Трушин Ю В *ЖТФ* **42** 58 (1988)

Metal modification by high-power pulsed particle beams

V.I. Boiko

*Tomsk Polytechnical University
634004 Tomsk, Russian Federation
Tel. (7-8382) 41-89 02. Fax (7-8382) 41-89 01
E-mail: boiko@phtd.tpu.ru*

A.N. Valyaev

*East Kazakhstan Technical University
ul. Lugovaya 19, 492022 Ust'-Kamenogorsk, Kazakhstan
Tel. (7-3232) 40-68 63. Fax (7-3232) 26-89 31
E-mail: root@vkut.iatp.kz*

A.D. Pogrebnyak

*Sumy Institute for Surface Modification
P.O. Box 163, prosp. Shevchenko 17, 244034 Sumy, Ukraine
Tel. (38-0542) 22-03 38. Fax (38-0542) 27-50 02
E-mail: pogreb@diskret.sumy.ua*

The current state of the art in modification of iron, steel, and titanium alloys and some metal multilayers by medium intensity (10^6 – 10^9 W cm $^{-2}$) pulsed electron and ion beams is summarized, including the contribution from the authors. Many of the processes that determine a defect structure and its properties are described and such problems as the formation of elastic-plastic and shock waves, mixing of multilayers, thin film deposition, and nanophase powder synthesis are discussed. The high potential of the particle beam technology — in particular, for improving the operating characteristics of materials — have been demonstrated amply by research centres worldwide.

PACS numbers: **41.75.-i, 61.80.-x, 81.15.-z, 81.40.-z**

Bibliography — 159 references

Received 24 April 1998, revised 27 May 1999