

ПРИНЦИП ОДНОРОДНОГО ИОННОГО ЛЕГИРОВАНИЯ ОБРАЗЦОВ МАТЕРИАЛОВ ДЛЯ СТРУКТУРНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ

Д.А. Комарова, А.С. Сохацкий, А.И. Крылов, Н.В. Курьлев, С.А. Митрофанов
*Объединенный институт ядерных исследований,
ул. Жолио-Кюри 6, 141980 Дубна, Московская обл., Россия,
dianakomarova@jinr.ru, sohatsky@jinr.ru, krylov@jinr.ru,
nkurylev@inbox.ru, mitrofanov@jinr.ru*

Разработан принцип однородного ионного легирования образцов материалов для структурных исследований с помощью просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ). В основе метода лежит идея равномерного сканирования зоной останова ионов по глубине в веществе мишени. Для этого были рассмотрены возможные способы получения однородного распределения концентрации легированной ионной примеси в образцах материалов. Была разработана и изготовлена конструкция мишенного узла, в которой предполагается облучать поворотную мишень, приводящуюся в движение с помощью шагового двигателя, скорость вращения которой может изменяться по заданной функциональной зависимости от угла поворота. На основе теоретических расчетов написано программное обеспечение управления механизмом движения мишени и системой измерения ионного пучка. Основным результатом работы программы – построение распределения концентрации имплантированной примеси по глубине в режиме реального времени с учетом измерений ионного тока пучка.

Ключевые слова: однородное ионное легирование; ионная имплантация; поворотная мишень; ПЭМ; просвечивающая электронная микроскопия; атомы инертных газов; реакторные материалы.

THE PRINCIPLE OF UNIFORM ION DOPING OF MATERIAL SAMPLES FOR STRUCTURE RESEARCHES

D.A. Komarova, A.S. Sohatsky, A.I. Krylov, N.V. Kurylev, S.A. Mitrofanov
*Joint Institute for Nuclear Research,
6 Joliot-Curie Str., 141980 Dubna, Moscow Region, Russia,
dianakomarova@jinr.ru, sohatsky@jinr.ru, krylov@jinr.ru,
nkurylev@inbox.ru, mitrofanov@jinr.ru*

The principle of uniform ion doping of materials samples for structure researches by transmission electron microscopy (TEM) was developed. At the heart of the method, there is an idea of uniform scanning of ions zone stopping across the depth in a target material. For it, the possible ways of getting of uniform concentration distribution of implanted ion impurity were considered in materials samples. A target node construction was developed and created, in which it supposes to irradiate a rotating target, which is moved by a stepper motor. The target rotation velocity can change according with given function dependence versus a rotation angle. Based on theoretical calculations we developed the software for target motion control and ion beam measuring system. The main result of the program work is building of ion doping profile in real time considering measurements of ion beam current.

Keywords: uniform ion doping; ion implantation; rotating target; TEM; transmission electron microscopy; noble gases atoms; reactor materials.

Введение

Как известно, топливные и конструкционные материалы активной зоны ядерных реакторов в течение эксплуатации подвергаются облучению нейтронами с большим флюенсом [1]. Высокоэнергетические нейтроны, попадая в вещество, вызывают образование в результате ядерных реакций примесных атомов. В основном продуктами ядерных реакций являются инертные

газы (ИГ), например, изотопы Kr, Xe (осколки деления, накапливаются в материалах ядерного топлива) и He (продукт (n, α) -реакций, накапливается в металлических конструкциях активной зоны ядерного реактора) [2]. Основное свойство данных примесей – нерастворимость в большинстве твердых материалов [3]. Такие атомы не могут существовать в материале

в виде примеси внедрения, и стремятся к сегрегации на дефектах структуры. Это приводит к ускоренной деградации механических свойств материалов активной зоны ядерного реактора [1, 4], а также ограничивает степень выгорания топлива из-за угрозы потери работоспособности конструкций. Поэтому очень важно изучать структурные особенности реакторных материалов, легированных инертными атомами, как основной аспект их радиационной стойкости.

По причине нерастворимости атомов инертных газов, единственными способами легирования ими образцов реакторных материалов в исследовательских целях являются облучение образцов в исследовательском ядерном реакторе и ионная имплантация с помощью ускорителей заряженных частиц [4]. Ионная имплантация организационно намного проще и дешевле облучения в ядерном реакторе и занимает на порядки меньше времени. Кроме того, ионное облучение соответствующими частицами позволяет имитировать радиационное повреждение материалов, вызываемое как осколками деления, так и α -частицами [1]. Однако, основная проблема ионного облучения – получение требуемой концентрации легирующей примеси в объеме исследуемого образца.

В качестве экспериментального метода для структурных исследований материалов обычно используется просвечивающая электронная микроскопия (ПЭМ) [3, 5-7]. В типичном электронном микроскопе для получения информации о структуре материала используется пучок электронов с энергией 200 кэВ [7], проходящий сквозь тонкий образец. Это позволяет непосредственно наблюдать структуру материалов с высоким пространственным разрешением, но накладывает ограничение на толщину исследуемых образцов. Так, объекты для ПЭМ должны представлять собой специально приготовленные тонкие фольги, толщиной до 100 мкм [6], вырезаемые из нужного места в предназначенном для исследования материале. Применительно к

задачам радиационного материаловедения под «нужным местом» здесь следует понимать область образца, подверженную радиационному воздействию, например, область ионного легирования материала примесью.

Однако главная проблема при проведении таких экспериментов заключается в том, что при обычной схеме перпендикулярного облучения образцов ионным пучком определенной энергии на ускорителе основная часть имплантированной примеси располагается на глубине, близкой к значению среднего проективного пробега ионов [4] для данной энергии (рис. 1).

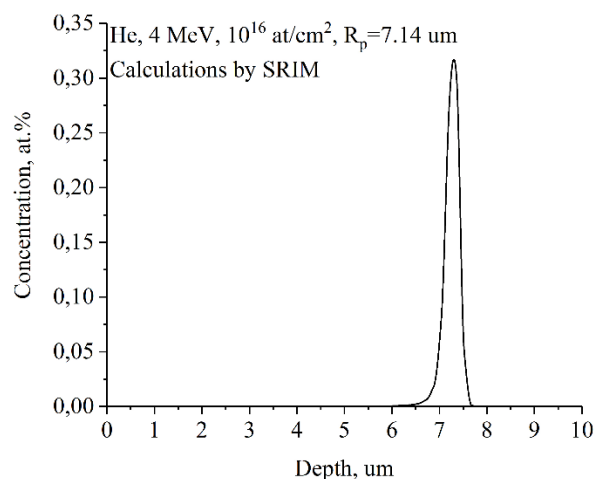


Рис.1. Пример распределения по глубине имплантированной примеси гелия в железе
Fig.1. An example of implanted helium impurity distribution across the depth in iron

Здесь ширина получаемой области легирования мала и не превышает долей мкм, при этом концентрация примеси в ней распределена по глубине немонотонным образом, близким по форме к функции Гаусса. Это крайне неудобно для микроскопических структурных исследований и, обычно, приводит к малоинформативным результатам.

Ситуацию можно исправить, если разработать способ равномерного сканирования зоной остановки ионов по глубине в веществе мишени и, тем самым, получить равномерное распределение легированной примеси по глубине в образце. Данная задача и является целью данной работы.

Результаты и их обсуждение

Для того чтобы заставить зону остановки ионов двигаться к поверхности, нужно непрерывно уменьшать энергию ионов. Проще всего это сделать, облучая образец через поглощающий фильтр переменной толщины – дегрейдер (рис. 2).

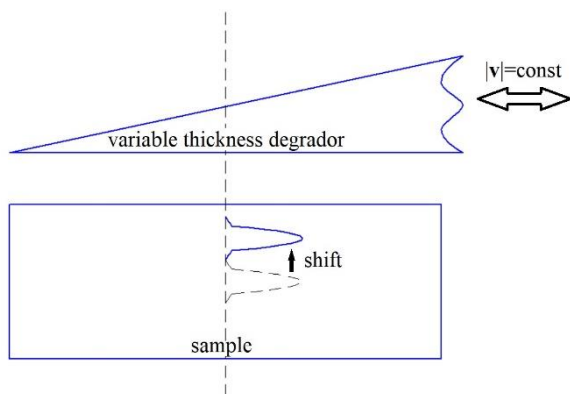


Рис.2. Схематическое изображение дегрейдера переменной толщины,двигающегося в горизонтальной плоскости параллельно поверхности плоского образца. Схематически показано смещение распределения концентрации ионной примеси к поверхности образца

Fig.2. Schematic of degrader with variable thickness moving in horizontal plane parallel to plate sample surface. An ion impurity concentration distribution shift to the sample surface is shown schematically

В качестве такого дегрейдера рассматривалась тонкая алюминиевая фольга, изогнутая по параболе и движущаяся в обе стороны поступательно (как показано на рис. 2).

Через данную фольгу проходят ионы с начальной энергией E_0 , теряя в фольге часть своей энергии, значение которой зависит от расстояния Δu , которое прошел ион в изогнутой фольге. Значения остаточной энергии, также, как и расчетные профили концентрации, можно получить, зная значения Δu , с помощью расчетов в программе SRIM (рис. 3).

Характерной чертой данного метода является то, что равномерное распределение образовывается у самой поверхности образца.

Из-за потребности минимизировать роль поверхности в структурных исследованиях, для того чтобы при подготовке образцов к ПЭМ исследованиям максималь-

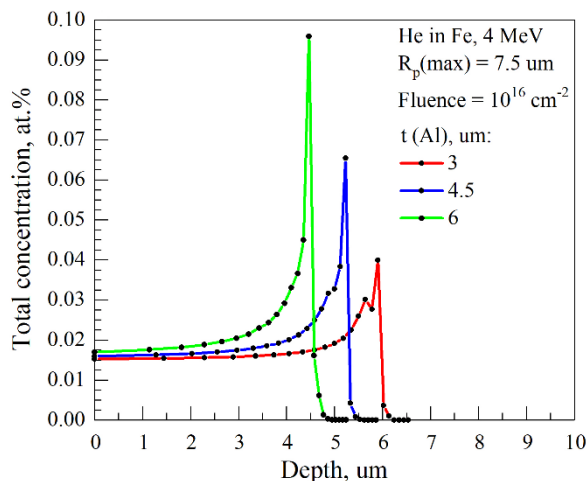


Рис. 3. Результаты расчета однородного распределения легированной ионной примеси при использовании изогнутой фольги по параболе в качестве дегрейдера. Начальная энергия ионов He принималась 3 МэВ

Fig. 3. Calculation results of uniform ion impurity distribution with usage of bounded foil as a degrader. Initial He-ion energy is equal 3 MeV

но сохранить всю внедренную ионную примесь в объеме образца, а также ввиду определенных технических сложностей с применением тонких алюминиевых фольг было решено отказаться от данного метода.

В качестве еще одного способа непрерывного уменьшения начальной энергии ионов может служить облучение непрерывно наклоняемого плоского образца, где роль дегрейдера играет толщина самого образца.

Здесь результирующий профиль легирования (P) будет математически представлять собой свертку функции мгновенного нормированного распределения внедряемых частиц (p) для данного значения угла поворота (α) с функцией экспозиции (E), учитывающей плотность потока частиц (F), изменение площади засветки мишени из-за ее наклона и мгновенную угловую скорость вращения (ω):

$$P = p * E = \int_{\alpha_{min}}^{\alpha_{max}} P(x + y(\alpha)) \cdot E(\alpha) d\alpha$$

$$E(\alpha) = \frac{F \cdot \cos \alpha}{\omega(\alpha)}$$

Расчеты показали, что идеальный желаемый результат теоретически достигается,

когда угловая скорость изменяется по закону $\omega \sim \cot \alpha$ (рис. 4).

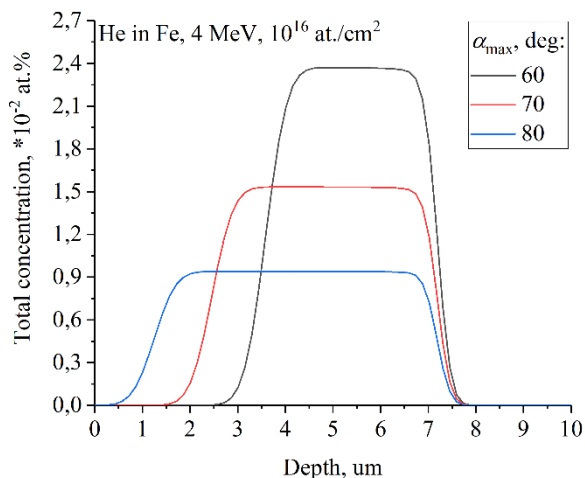


Рис. 4. Результаты расчета однородного распределения легированной ионной примеси при использовании вращения мишени по закону $\omega \sim \cot \alpha$
Fig. 4. Calculation results of uniform ion impurity distribution with usage of target rotation according to $\omega \sim \cot \alpha$

На основании проделанных расчетов был сконструирован мишенный узел, в котором поворотная мишень приводится в движение при помощи шагового двигателя. Для управления шаговым двигателем и системой измерения ионного пучка была написана программа в среде разработки LabView, в которой вместо изменения угловой скорости шагового двигателя меняется время простоя мишени в определенном угловом положении $dt \sim \tan \alpha$.

На рис. 5 показаны распределения легированной ионной примеси, получаемые при качании мишени если ток ионного пучка принять постоянным в течение всего времени движения поворотной мишени (тестовое движение).

Так как при работе шагового двигателя возникает ряд временных задержек, обусловленных скоростью передачи данных через СОМ-порт, минимальным временем выполнения программой одной операции и т.п., то возникает ситуация, когда теоретическое время простоя мишени в определенном положении должно быть меньше, чем реальное затраченное время. Фактическое движение мишени начинает запаздывать по сравнению с теоретическим, что

приводит к расхождениям между получаемым распределением ионной легированной примеси при реальном движении мишени с теоретически рассчитанным (видно из сравнения красной кривой на рис. 4 с кривыми на рис. 5).

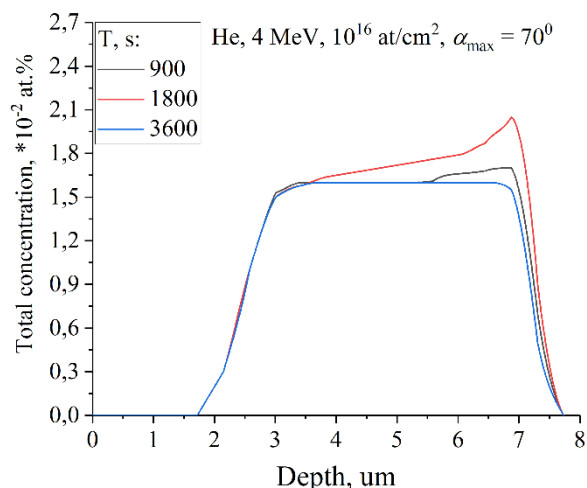


Рис. 5. Однородные распределения легированной ионной примеси с учетом реального движения мишени: T – период качания в пределах от $-a_{\max}$ до $+a_{\max}$ градусов

Fig. 5. Uniform ion impurity distribution getting by real target rotation by stepper motor. T is the oscillation period within the range from $-a_{\max}$ to $+a_{\max}$ degrees

Ситуацию можно исправить, если принять период одного качания мишени (движение от $-a_{\max}$ до $+a_{\max}$ и обратно) достаточно большим (1800 с и более). При $T=3600$ с получаемое распределение концентрации практически совпадает с теоретически рассчитанным.

Заключение

Разработан принцип однородного ионного легирования образцов материалов для последующих структурных исследований с помощью ПЭМ. В основе метода лежит идея равномерного сканирования зоной остановки ионов по глубине в веществе мишени. Разработана и изготовлена конструкция мишенного узла, в которой облучается поворотная мишень, приводимая в движение шаговым мотором. На основании теоретических расчетов написана программа управления движением мишени по заданной функциональной зависимости от угла поворота. Результатом эксперимента

с использованием программы является построение в реальном времени профиля ионного легирования по данным измерения ионного пучка. В дальнейшем планируются эксперименты с использованием пучков ионов He (4 МэВ, ЭГ-5, ЛНФ, ОИЯИ) и ионов Хе (167 МэВ, ИЦ-100, ЛЯР, ОИЯИ).

Библиографические ссылки

1. Ибрагимов Ш.Ш. Радиационные нарушения в металлах и сплавах. В кн.: Ибрагимов Ш.Ш., редактор. Материалы Всесоюзного совещания «Радиационные дефекты в металлических кристаллах». (14-16 июня 1977 года), г. Алма-Ата. Алма-Ата: Издательство «Наука» Казахской ССР; 1978. С. 3-30.
2. Колпаков Г.Н., Селиваникова О.В. Конструкции твэлов, каналов и активных зон энергетических реакторов: учебное пособие. Томск: Издательство Томского политехнического университета, 2009. 118 с.
3. Taylor C.A., Sugar J.D., Robinson D.B., Bartelt N.C., Sills R.B., Hattar K. Using in situ TEM helium implantation and annealing to study cavity nucleation and growth. *The Journal of the Minerals, Metals & Materials Society (TMS)* 2020; (72): 2032-2041.
4. Залужный А.Г., Сокурский Ю.Н., Тебус В.Н. Гелий в реакторных материалах. Москва: Энергоатомиздат; 1988. 224 с.
5. Evans J.H., Van Veen A., Caspers L.M. The application of TEM to the study of helium cluster nucleation and growth in molybdenum at 300 K. *Radiation Effects* 1983; 78(1-4): 105-120.
6. Хирш П., Хови А., Николсон Р., Пэшли Д., Уэлан М. Электронная микроскопия тонких кристаллов. Москва: Мир, 1968. 576 с.
7. Williams D.B., Barry Carter C. *Transmission Electron Microscopy*. Boston: Springer US; 2009. 775 p.

References

1. Ibragimov Sh.Sh. Radiatsionnye narusheniya v metallakh i splavakh. [Radiation disturbances in metals and alloys]. V kn.: Ibragimov Sh.Sh., redaktor. Materialy Vsesoyuznogo soveshchaniya «Radiatsionnye defekty v metallicheskih kristallakh». (14-16 iyunya 1977 goda), g. Alma-Ata. Alma-Ata: Izdatel'stvo «Nauka» Kazakhskoy SSR; 1978. S. 3-30. (In Russian)
2. Kolpakov G.N., Selivanikova O.V. Konstruktsii tvelov, kanalov i aktivnykh zon energeticheskikh reaktorov. [Design of fuel elements, channels and active cores of power reactors]. Tomsk: Izdatel'stvo Tomskogo politekhnicheskogo universiteta, 2009. 118 p. (In Russian)
3. Taylor C.A., Sugar J.D., Robinson D.B., Bartelt N.C., Sills R.B., Hattar K. Using in situ TEM helium implantation and annealing to study cavity nucleation and growth. *The Journal of the Minerals, Metals & Materials Society (TMS)* 2020; (72): 2032-2041.
4. Zaluzhnyy A.G., Sokurskiy Yu.N., Tebus V.N. Geliy v reaktornykh materialakh. Moscow: Energoatomizdat; 1988. 224 s.
5. Evans J.H., Van Veen A., Caspers L.M. The application of TEM to the study of helium cluster nucleation and growth in molybdenum at 300 K. *Radiation Effects* 1983; 78(1-4): 105-120.
6. Khirsh P., Khovi A., Nikolson R., Peshli D., Uelan M. Elektronnaya mikroskopiya tonkikh kristallov. [Electron microscopy of thin crystals]. Moscow: Mir, 1968. 576 p. (In Russian)
7. Williams D.B., Barry Carter C. *Transmission Electron Microscopy*. Boston: Springer US; 2009. 775 p.