

**ВОЗДЕЙСТВИЕ ЛАЗЕРНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ НА ВЕЩЕСТВО**

PACS 81.15.Fg; 81.16.Mk; 29.25.Dz

**О возможности увеличения времени эксплуатации мишени генератора нейтронов путем создания лазерно-индуцированного нанорельефа на границе раздела пленка – подложка****В.И.Емельянов, Д.А.Заярный, А.А.Ионин, С.И.Кудряшов, С.В.Макаров, П.Н.Салтуганов**

*Рассмотрена эволюция ансамбля точечных дефектов (вакансий и междоузлий), образованных в результате облучения дейтерием титановой мишени (пленка-сорбент на подложке), насыщенной тритием. Показано, что при превышении концентрации дефектов критической величины пленка переходит в квазипериодическое изгибное состояние с одновременным образованием скоплений дефектов в экстремумах спонтанно возникающего рельефа поверхности раздела пленка–подложка и на поверхности пленки. Скопление вакансий приводит к образованию пор. Последующие отслоение или разрывы пленки в местах образования больших пор на границе раздела пленка–подложка приводит к необратимой деградации мишени. Обсуждается возможность подавления этого эффекта путем создания лазерно-индуцированного нанорельефа на поверхности подложки перед напылением на нее пленки-сорбента и экспериментально демонстрируются разные варианты такого рельефа.*

**Ключевые слова:** неустойчивость поверхности раздела подложка–пленка с радиационными дефектами, макропоры, обработка подложки фемтосекундными лазерными импульсами, периодические поверхностные наноструктуры, подавление образования макропор.

**1. Введение**

Нейтронный генератор (НГ) состоит из тонкой титановой пленки, насыщенной тритием (Т) и нанесенной на металлическую подложку (молибден). Нейтроны (n) с энергией  $E_n = 14.1$  МэВ получают в процессе облучения пленки потоком ускоренных ионов дейтерия (D) в результате ядерной DT-реакции  $D + T \rightarrow n + {}^4\text{He}$ . Нейтроны испускаются из мишени изотропно, а ядра He – в направлении, противоположном направлению испускания нейтрона.

Практически важной задачей по улучшению эксплуатационных характеристик НГ является повышение механической стабильности границы раздела сорбент–подложка [1]. Одной из причин, влияющих на механические свойства пленки-сорбента, является образование в ней при облучении потоком частиц в процессе эксплуатации НГ точечных дефектов: междоузлий и вакансий.

Потенциальную опасность для нормального функционирования НГ представляет образование достаточно больших скоплений точечных дефектов в объеме пленки

и, в особенности, на границе раздела пленка–подложка, приводящих к отслоению пленки от подложки (или разрыву пленки). В настоящей работе, с использованием подхода, предложенного в работе [2], построена модель дефектно-деформационной (ДД) самоорганизации квазипериодических скоплений точечных дефектов на границе раздела пленка–подложка и на поверхности пленки и рассмотрена возможность подавления этого эффекта путем нанесения нанорельефа на поверхность подложки перед напылением пленки.

Рассматривается тонкая (толщиной порядка одного микрометра) металлическая (титановая) пленка, насыщенная тритием, соединенная с подложкой (молибден). Пленка облучается потоком ионов дейтерия, длина свободного пробега которых сравнима с толщиной пленки. В результате облучения по всей толщине пленки образуются подвижные точечные дефекты (вакансии и междоузлия) с высокой концентрацией. Пленка, насыщенная дефектами, имеет постоянную кристаллической решетки, отличную от постоянной решетки подложки. Это приводит к возникновению латерального механического напряжения  $\sigma_{||}$  в пленке. Мы будем предполагать, что это напряжение является растягивающим ( $\sigma_{||} > 0$ ). Такое предположение можно обосновать тем, что междоузлия быстро уходят из объема пленки на ее поверхность (или, под ударами дейтерия, к поверхности раздела пленка–подложка). Насыщенная вакансиями пленка стремится сжаться, поскольку деформационный потенциал вакансий отрицателен. Это и обуславливает появление растягивающего напряжения в пленке на подложке.

Изначально плоская, находящаяся под действием растягивающего напряжения пленка, насыщенная подвижными точечными дефектами, при превышении концентрации точечных дефектов критической величины (или критического напряжения  $\sigma_{||}$ ) становится неустойчивой и

**В.И.Емельянов.** Московский государственный университет им. М.В.Ломоносова, физический факультет, Россия, 119991 Москва, Воробьевы горы; e-mail: emel@em.msk.ru

**Д.А.Заярный, А.А.Ионин, С.В.Макаров.** Физический институт им. П.Н.Лебедева РАН, Россия, 119991 Москва, Ленинский просп., 53  
**С.И.Кудряшов.** Физический институт им. П.Н.Лебедева РАН, Россия, 119991 Москва, Ленинский просп., 53; Национальный исследовательский ядерный университет «МИФИ», Россия, 115409 Москва, Каширское ш., 31; e-mail: sikudr@sci.lebedev.ru

**П.Н.Салтуганов.** Физический институт им. П.Н.Лебедева РАН, Россия, 119991 Москва, Ленинский просп., 53; Московский физико-технический институт (государственный университет), Россия, Московская обл., 141700 Долгопрудный, Институтский пер., 9

Поступила в редакцию 7 марта 2014 г., после доработки – 22 апреля 2014 г.

переходит в периодически-изгибное стационарное состояние с одновременным образованием скоплений дефектов в экстремумах рельефа поверхности раздела пленка – подложка и на поверхности пленки. При этом деформация среды внутри пленки задается так же, как и в изгибной волне Лэмба, а деформация в подложке – так же, как и в волне Рэлея. Такая периодическая модуляция рельефа поверхности раздела со спаренной с нею решеткой скоплений дефектов составляет ДД решетку, которая характеризуется волновым вектором  $q$ . ДД решетка образуется благодаря развитию ДД неустойчивости, в линейном режиме которой амплитуды ДД решеток растут во времени как  $\exp(\lambda_q t)$ , где  $\lambda_q$  – инкремент нарастания. Значение  $q = q_m$ , при котором достигается максимум инкремента, определяет период доминирующих решеток  $\Lambda_m = 2\pi/q_m \sim h$  ( $h$  – толщина пленки), которые и выделяются в фурье-спектре поверхностного рельефа.

Суперпозиция ДД решеток с различными векторами  $q$  образует ламелиобразную ДД структуру на поверхности раздела пленка – подложка с характерным масштабом неоднородности, определяемым значением  $\Lambda_m$ . В местах сжатия пленки на границе раздела пленка – подложка образуются большие скопления вакансий (поры), что приводит к отслоению пленки от подложки и, следовательно, к необратимой деградации НГ.

В настоящей работе обсуждается возможность подавления ДД неустойчивости путем лазерно-индуцированного нанесения нанорельефа как на поверхность подложки перед напылением на нее пленки мишени, так и на поверхность пленки после ее напыления. Ранее было показано, что воздействие лазерного излучения на поверхность позволяет контролируемым образом создавать разные типы структур на поверхности различных материалов [3], в том числе и тугоплавких [4]. Стоит отметить перспективность использования для этой цели лазерных УКИ ввиду локальности нагрева поверхности при их воздействии, а также возможность формирования периодических поверхностных наноструктур с характерным периодом, много меньшим длины волны излучения [5–8].

## 2. Исходные уравнения, описывающие ДД неустойчивость напряженной пленки с подвижными дефектами

В поверхностной пленке толщиной  $h$  вследствие облучения потоком ионов дейтерия образуются точечные дефекты с концентрацией  $n_d$ , которые являются центрами дилатации. Плоскость  $z = 0$  совпадает с границей раздела пленка – подложка, ось  $z$  направлена от границы раздела в объем пленки (рис.1). Распределение концентрации дефектов в пленке запишем в виде

$$n_d(x, y, z, t) \equiv N_d(x, y, t)f(z), \tag{1}$$

где  $N_d(x, y, t)$  – концентрация дефектов на границе раздела  $z = 0$ ; функция  $f(z)$ , задающая распределение дефектов вдоль нормали к пленке, будет определена ниже (см. формулу (9)).

При записи уравнений ДД модели будем считать диффузию и дрейф дефектов изотропными. Поток дефектов  $\mathbf{j}_d$  вдоль границы раздела пленка – подложка (и на поверхности пленки) состоит из диффузионной и деформационно-индуцированной частей:

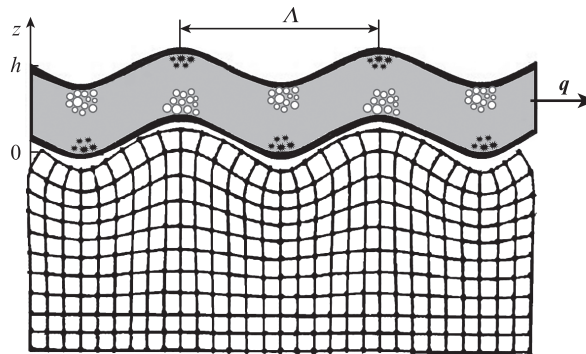


Рис.1. Пленка титана (на подложке) толщиной  $h$  с вакансиями (светлые символы) в местах ее сжатия и междуузлиями (темные символы) в местах растяжения (обозначения см. в тексте).

$$\mathbf{j}_d = -D_d \nabla N_d + N_d \frac{D_d}{k_B T} \mathbf{F}(\mathbf{r}), \tag{2}$$

где  $D_d$  – коэффициент диффузии;  $T$  – температура;

$$\mathbf{F}(\mathbf{r}) = \theta_d \nabla \xi|_{z=0} \tag{3}$$

– латеральная сила, действующая на дефект со стороны деформированного упругого континуума;  $\mathbf{r} = (x, y)$ ;  $\nabla = \mathbf{e}_x \partial/\partial x + \mathbf{e}_y \partial/\partial y$ ;  $\mathbf{e}_x$  и  $\mathbf{e}_y$  – единичные векторы вдоль осей  $x$  и  $y$ ;  $\theta_d = \Omega_d K$  – деформационный потенциал дефекта;  $\Omega_d$  – изменение объема пленки при образовании одного дефекта;  $K$  – объемный модуль упругости в пленке;  $\xi = \xi(x, y, z) = \text{div} \mathbf{u}$  – деформация пленки;  $\mathbf{u} = \mathbf{u}(x, y, z, t)$  – вектор смещения среды в пленке.

Используя выражение (3) в уравнении непрерывности для  $N_d$ , получаем уравнение латеральной диффузии вдоль поверхности раздела с учетом деформационно-индуцированного дрейфа дефектов:

$$\frac{\partial N_d}{\partial t} = D_d \Delta N_d - \frac{D_d \theta_d}{k_B T} \text{div}_{\parallel} (N_d \nabla \xi|_{z=0}), \tag{4}$$

где  $\Delta = \partial^2/\partial x^2 + \partial^2/\partial y^2$ ;  $\text{div}_{\parallel} \mathbf{A} = \partial A_x/\partial x + \partial A_y/\partial y$ . Здесь время жизни дефекта  $\tau_d = \infty$ .

Деформация пленки  $\xi$  определяется по формуле [9]

$$\xi(x, y, z, t) = -v \left( z - \frac{h}{2} \right) \Delta \zeta(x, y, t), \tag{5}$$

где  $v = (1 - 2\sigma_p)/(1 - \sigma_p)$ ;  $\sigma_p$  – коэффициент Пуассона пленки;  $\zeta$  – изгибная координата пленки (смещение точек срединной плоскости по оси  $z$ ). Линейная знакопеременная зависимость деформации в слое от координаты  $z$  (5) является характерной особенностью волны Лэмба в пластинах [10].

Для координаты  $\zeta$  запишем линейное уравнение, которое получается обобщением обычного уравнения изгиба свободной пленки:

$$\frac{\partial^2 \zeta}{\partial t^2} + I_0^2 c^2 \Delta^2 \zeta - \frac{\sigma_{\parallel}}{\rho_f} \Delta \zeta = \frac{\theta_d}{\rho_f h} \int_0^h \frac{\partial n_d}{\partial z} dz, \tag{6}$$

где  $\rho_f$  – плотность пленки;  $c^2 = E_f/[\rho_f(1 - \sigma_p^2)]$  – коэффициент жесткости пленки;  $E_f$  – модуль Юнга;  $I_0^2 = h^2/12$ . Отметим, что изгибная жесткость пленки (коэффициент перед  $\Delta^2 \zeta$ ) зависит от толщины пленки  $h$ , которая играет роль специфического для ДД неустойчивости пленки масштабного параметра. В левой части (6) член, пропор-

циональный  $\sigma_{\parallel}$ , учитывает влияние изотропного латерального напряжения в пленке, возникающего вследствие рассогласования параметров решетки в пленке и подложке. Предполагается, что  $\sigma_{\parallel} > 0$ , т.е. пленка находится под действием растягивающего напряжения, которое считается заданным. Правая часть (6) учитывает дефектно-индуцированную изгибающую силу, действующую вдоль нормали к поверхности пленки, возникающую вследствие неравномерного распределения дефектов вдоль оси  $z$ . Пленочная ДД модель, описываемая уравнениями, аналогичными (4)–(6), впервые была предложена в работе [11].

Изгиб пленки вызывает появление в подложке вектора смещения  $\mathbf{u}$ , что ведет к появлению в правой части (6) дополнительного члена  $\sigma_{\perp}/(\rho_f h)$ , где  $\sigma_{\perp}$  – напряжение, нормальное к поверхности пленки, которое возникает вследствие действия подложки на пленку (реакция подложки). Кроме того, на границе раздела пленка–подложка в общем случае следует учесть граничные условия для квазилэмбовских волн смещения в пленке и квазирэлеевских волн в подложке (рис.1). Учет реакции подложки в полной постановке задачи [12] показывает, что этой реакцией можно пренебречь, если выполняется условие

$$\sigma_{\parallel} > \mu_s [\Lambda_m (1 - \beta_s) / (\pi h)], \quad (7)$$

где  $\Lambda_m$  – период ДД структуры (рис.1);  $\beta_s = c_t^2/c_s^2$ ;  $c_1$  и  $c_t$  – продольная и поперечная скорости звука в подложке;  $\mu_s$  – модуль сдвига в подложке на границе раздела пленка–подложка. Условие (7) может быть выполнено, например, в случае, когда вследствие генерации дислокаций несоответствия эффективный модуль сдвига на границе раздела  $\mu_s \rightarrow 0$  [13, 14]. Мы рассмотрим здесь простейшую модель «свободной пленки», т.е. будем пренебрегать реакцией подложки, полагая, что условие (7) выполнено. Тогда система уравнений (4)–(6) и (1), при условии определения  $f(z)$ , является замкнутой и описывает ДД неустойчивость напряженной поверхностной пленки с подвижными дефектами.

### 3. ДД уравнение Курамото–Сивашинского для концентрации дефектов на границе раздела пленка–подложка

В адиабатическом приближении по изгибной деформации пленки ( $\partial^2 \xi / \partial t^2 = 0$ ) из (6) получаем уравнение для изгибной координаты

$$l_{\parallel}^2 c^2 \Delta^2 \xi - \frac{\sigma_{\parallel}}{\rho_f} \Delta \xi = \frac{\theta_d}{\rho_f h} [n_d(z=h) - n_d(z=0)]. \quad (8)$$

Поскольку  $h < \Lambda_m$  (см. формулу (21)), то распределение концентрации дефектов  $n_d(x, y, z, t)$  по координате  $z$ , возникающее вследствие изгиба пленки, быстро подстраивается под распределение изгибной деформации по  $z$ , задаваемое формулой (5). Поэтому та часть  $n_d$ , которая дает ненулевой вклад в (6), является антисимметричной функцией  $z$ :

$$n_d(x, y, z, t) = \frac{2}{h} \left( \frac{h}{2} - z \right) N_d(x, y, t). \quad (9)$$

Выражение (9) определяет функцию  $f(z)$  в (1). Из (9) следует, что

$$n_d(z=0) = -n_d(z=h) = N_d. \quad (10)$$

Используем теперь в (8) выражение  $\xi \equiv \xi(z=0) = (vh/2)\Delta \xi$  для деформации на поверхности  $z=0$ , следующее из (5). Тогда получим уравнение для поверхностной деформации

$$\Delta \xi - \frac{1}{l_{\parallel}^2} \xi = -\frac{v\theta_d}{l_0^2 \rho_f c^2} N_d, \quad (11)$$

где введен масштабный параметр  $l_{\parallel} = h[\rho_f c^2 / (12\sigma_{\parallel})]^{1/2}$ .

Будем решать уравнение (11), используя теорию возмущений по малому параметру  $l_{\parallel}^2 / \Lambda_m^2 \ll 1$ . Представляя изгибную координату в виде  $\xi = \xi^{(0)} + \xi^{(1)}$ , где  $\xi^{(0)}$  и  $\xi^{(1)}$  – решения соответственно нулевого и первого порядка малости, находим из (11) выражение для деформации на поверхности слоя, нелокально зависящей от концентрации дефектов на поверхности раздела пленка–подложка:

$$\xi(z=0) = \frac{v\theta_d}{\rho c_{\parallel}^2} N_d + \frac{v\theta_d}{\rho c_{\parallel}^2} l_{\parallel}^2 \Delta N_d, \quad (12)$$

где  $c_{\parallel}^2 = \sigma_{\parallel} / \rho$ . Подставляя (12) в (4), получаем уравнение

$$\frac{\partial N_d}{\partial t} = D_d \left( 1 - \frac{N_d}{N_{dc}} \right) \Delta N_d - D_d \frac{N_d}{N_{dc}} l_{\parallel}^2 \Delta^2 N_d - \frac{D_d}{N_{dc}} (\nabla N_d)^2, \quad (13)$$

где критическая концентрация дефектов

$$N_{dc} = \sigma_{\parallel} k_B T / (v\theta_d^2). \quad (14)$$

При выводе (13) мы пренебрегли нелинейным членом  $D_d l_{\parallel}^2 (\nabla N_d) \nabla (\Delta N_d) / N_{dc}$ , поскольку он мал (порядка  $l_{\parallel}^2 / \Lambda_m^2$ ) по сравнению с оставленным нелинейным членом, пропорциональным  $(\nabla N_d)^2$ .

Нелинейное уравнение (13) аналогично известному уравнению Курамото–Сивашинского (КС) [15, 16] со следующими существенными отличиями. Коэффициент при первом члене в правой части (13) не является постоянным, как в уравнении КС, а зависит от динамической искомой переменной и может менять знак с возрастанием этой переменной. Коэффициент при дисперсионном члене (пропорциональный  $l_{\parallel}^2$ ) также зависит от динамической переменной, а не является постоянным, как в уравнении КС.

Аналитическое рассмотрение уравнения (13) провести невозможно, и мы оставляем эту задачу для последующего численного исследования. Здесь же мы покажем, что (13) в приближении среднего поля сводится к уравнению типа уравнения КС, и проведем линейный анализ решения этого уравнения для рассматриваемого случая ДД неустойчивости.

Представим концентрацию дефектов на поверхности раздела пленка–подложка в виде

$$N_d(x, y, t) = N_{d0} + N_{d1}(x, y, t),$$

где  $N_{d0}$  – пространственно однородная концентрация дефектов, играющая роль контрольного параметра, а  $N_{d1}(x, y, t)$  – ее пространственно неоднородная часть, возникающая спонтанно при превышении порога неустойчивости. При условии  $|N_{d1}(x, y, t)| < N_{d0}$ , вводя контрольный параметр  $\varepsilon = N_{d0} / N_{dc}$ , приводим (13) к виду

$$\frac{\partial N_{d1}}{\partial t} = -D_d(\varepsilon - 1)\Delta N_{d1} - D_d\varepsilon l_{\parallel}^2 \Delta^2 N_{d1} - D_d(\nabla N_{d1})^2 / N_{dc}. \quad (15)$$

Уравнение (15) имеет вид уравнения КС [15, 16] с тем существенным отличием, что коэффициент при диффузионном члене является константой, зависящей от превышения контрольным параметром  $N_{d0}$  критического значения  $N_{dc}$  и меняющей знак при прохождении через это значение. Проведем линейный анализ уравнения (15).

#### 4. Образование ДД структуры в линейном режиме неустойчивости

Используем фурье-разложения искоемых переменных:

$$N_d(\mathbf{r}, t) = \sum_{\mathbf{q}} N_d(\mathbf{q}) \exp(i\mathbf{q}\mathbf{r} + \lambda_{\mathbf{q}}t), \quad (16)$$

$$\zeta(\mathbf{r}, t) = \sum_{\mathbf{q}} \zeta_{\mathbf{q}} \exp(i\mathbf{q}\mathbf{r} + \lambda_{\mathbf{q}}t). \quad (17)$$

Поле  $\zeta(\mathbf{r}, t)$  определяет рельеф поверхности раздела пленка-подложка. Из (8), используя (9), выражаем фурье-амплитуду  $\zeta_{\mathbf{q}}$  с вектором  $\mathbf{q}$  через  $N_d(\mathbf{q})$ :

$$\zeta_{\mathbf{q}} = -\frac{2\theta_d N_d(\mathbf{q})}{\rho_f c^2 h l_0^2 (q^4 + l_{\parallel}^{-2} q^2)}. \quad (18)$$

Таким образом, каждая  $\mathbf{q}$ -гармоника концентрации дефектов связана с  $\mathbf{q}$ -й гармоникой рельефа поверхности раздела пленка-подложка.

В знаменателе (18) сумма двух членов представляет собой эффективную изгибную жесткость пленки с учетом латерального напряжения в ней (член, пропорциональный  $l_{\parallel}^{-2}$ ). ДД соотношение (18) имеет место и в начальный момент  $t = 0$ . Таким образом, затравочной амплитудой ДД решетки является флуктуация концентрации дефектов в начальный момент времени  $N_d(\mathbf{q}) \equiv N_d(\mathbf{q}, t = 0)$ .

Мы не разложили (18) в ряд по параметру  $l_{\parallel}^2/\Lambda_m^2$ , как это было сделано при решении уравнения (11), чтобы указать на то, что при решении задачи с учетом реакции подложки [12] в круглых скобках в знаменателе (18) появляется дополнительное слагаемое  $2(1 - \beta_s)\mu_s q/(h l_0^2 \rho_f c^2)$ , пренебрежение которым и приводит к условию (7). Отметим, что после такого разложения и использования (5) обратное фурье-преобразование выражения (18) приводит к формуле (12).

Делая фурье-преобразование линеаризованного уравнения (15), получаем инкремент нарастания ДД решетки

$$\lambda_{\mathbf{q}} = D_d q^2 (\varepsilon - 1) - D_d \varepsilon l_{\parallel}^2 q^4, \quad (19)$$

где  $\lambda_{\mathbf{q}}$  достигает максимального значения при  $q = q_m$ , причем

$$q_m = (1 - \varepsilon^{-1})^{1/2} / (\sqrt{2} l_{\parallel}). \quad (20)$$

Период доминирующей ДД решетки с волновым числом  $q_m$  есть

$$\Lambda_m = 2\pi/q_m = \frac{2\pi\sqrt{2} l_{\parallel}}{(1 - \varepsilon^{-1})^{1/2}} = 2\pi h \left[ \frac{\rho_f c^2}{6\sigma_{\parallel}(1 - \varepsilon^{-1})} \right]^{1/2}. \quad (21)$$

Период  $\Lambda_m$  пропорционален толщине слоя  $h$ , критически возрастает при  $N_{d0} \rightarrow N_{dc}$  и стремится к постоянному минимальному значению при  $N_{d0} \rightarrow \infty$ . Такое поведение

$\Lambda_m$  обосновывает введение малого параметра  $l_{\parallel}^2/\Lambda_m^2 = (1 - \varepsilon^{-1})/(8\pi^2)$ , разложение по которому лежит в основе нашей теории. Отметим, что существование этого параметра делает основным членом при разложении дополнительную изгибную жесткость, обусловленную напряжением  $\sigma_{\parallel}$  (см. формулу (6)), а исходная жесткость (пропорциональная  $c^2$  в (6)) является возмущением.

Максимальный инкремент для решетки с  $q = q_m$  есть

$$\lambda_m = \frac{D_d \varepsilon (1 - \varepsilon^{-1})^2}{4l_{\parallel}^2} = \frac{3\sigma_{\parallel} D_d}{\rho_f c^2 h^2} \varepsilon (1 - \varepsilon^{-1})^2. \quad (22)$$

Как видно из (20), при превышении концентрацией дефектов критической величины ( $\varepsilon > 1$ ) появляется действительное значение  $q_m$ , что соответствует образованию периодической ДД структуры.

В линейном режиме, помимо доминирующей ДД решетки с  $q = q_m$  и инкрементом  $\lambda_m$ , нарастают независимо друг от друга амплитуды целого континуума ДД решеток с волновыми векторами  $\mathbf{q}$  и инкрементами  $\lambda_{\mathbf{q}} > 0$ , состоящих из спаренных решеток рельефа поверхности раздела пленка-подложка (17) и концентрации дефектов (16), образующих суперпозиционную ДД структуру. Каждая ДД решетка с волновым вектором  $\mathbf{q}$  – это изгибная статическая волна Лэмба с длиной волны  $\Lambda = 2\pi/q$ , поддерживаемая самосогласованным распределением дефектов. Суммирование в (16), (17) проводится как по направлениям, так и по модулям векторов  $\mathbf{q}$ . Результат такого суммирования показан на рис.2.

Таким образом, в линейном режиме ДД неустойчивости образуется квазипериодическое ламелиобразное распределение концентрации дефектов на поверхности раздела пленка-подложка и на свободной поверхности пленки. Вследствие ДД связи (формула (18)) рис.2 дает также картину рельефа поверхности раздела пленка-подложка и поверхности пленки. Рельеф, представленный на рис.2, аналогичен рельефу, полученному численным решением уравнения (15) для свободной поверхности в [17]

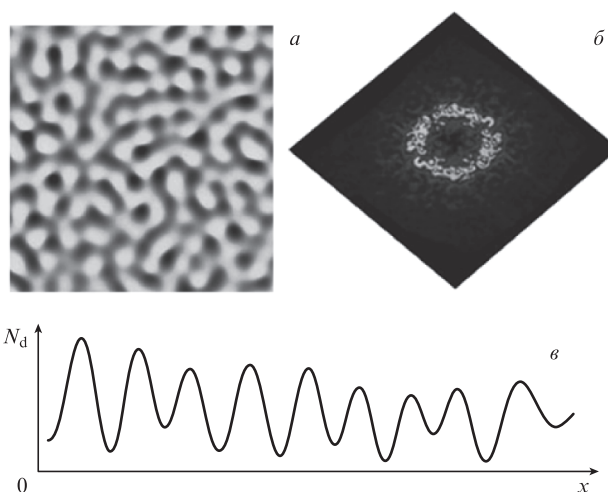


Рис.2. Ламелиобразное распределение дефектов на поверхности раздела пленка-подложка в результате развития ДД неустойчивости (вид сверху, светлые области – скопления дефектов) (а), фурье-спектр изображения на рис.2,а, показывающий суперпозицию фурье-гармоник с волновыми векторами  $\mathbf{q}$ , концы которых лежат на кольце со средним радиусом  $q = q_m$  (б), и сечение этого изображения, в котором квазимонохроматическое изменение концентрации дефектов указывает на линейный характер ДД неустойчивости (в).

при небольших превышениях концентрации дефектов порога и относительно малых временах.

В сильно развитом нелинейном режиме, при достаточно больших превышениях концентрацией дефектов порога ДД неустойчивости и больших временах ДД самоорганизации, режим образования хаотических ламинарных ДД структур (рис.2) сменяется режимом образования упорядоченных гексагональных ячеистых ДД структур [17]. Из формулы (18) следует, что скопления дефектов в таких ячеистых ДД структурах в рассматриваемом случае  $\theta_d < 0$  происходят на выступах рельефа поверхности раздела пленка–подложка и во впадинах рельефа на свободной поверхности пленки, т.е. в областях ее сжатия. Междоузлия с положительным потенциалом деформации  $\theta_d > 0$ , наоборот, скапливаются в местах растяжения пленки (см. рис.1).

### 5. Численные оценки

Активную роль в ДД неустойчивости могут играть как междоузлия, так и вакансии. Оценки проведем для случая, когда под точечными дефектами понимаются вакансии.

*Критическая концентрация вакансий.* Деформационный потенциал вакансии  $\theta_d = \Omega_d K$ . При  $K = 10^{12}$  эрг·см<sup>-3</sup> и  $|\Omega_d| \sim 0.1 V_{at}$ , где объем кристаллической ячейки  $V_{at} \sim 10^{-22}$  см<sup>3</sup>, получаем оценку  $\theta_d \approx -10$  эВ.

При  $T = 300$  К,  $|\theta_d| = 10$  эВ,  $\sigma_{||} = 10^{10}$  эрг·см<sup>-3</sup> (при давлении 1 ГПа),  $\nu = 1$  из (14) имеем оценку критической концентрации вакансий  $N_{dc} = 10^{18}$  см<sup>-3</sup>. Если  $N_{d0} = \text{const}$ , то ДД неустойчивость возникает при превышении критического значения напряжения:  $\sigma_{||} > \sigma_c = N_{d0} \nu \theta_d^2 / (k_B T)$ .

При  $N_{d0} > N_{dc}$  граница раздела переходит в состояние периодического изгиба с одновременным образованием скоплений вакансий (пор) в областях сжатия (рис.1).

*Размер  $\Lambda_m$  скоплений вакансий в пленке вдоль границы раздела (размер пор).* Используем в формуле (21)  $h = 10^{-4}$  см и  $\rho_f c^2 = K$ . При  $\varepsilon \gg 1$  (т.е. при  $N_{d0} \gg N_{dc}$ ) получаем оценку  $\Lambda_m \sim 25$  мкм.

*Время образования скоплений вакансий (пор) с размером  $\Lambda_m$  (время эксплуатации НГ).* Время образования ДД сверхрешетки пор  $t_m$  можно оценить, используя (22):

$$t_m \sim \lambda_m^{-1} = \frac{h^2 \rho_f c^2}{D_d \varepsilon (1 - \varepsilon^{-1})^2 3 \sigma_{||}}, \quad (23)$$

где коэффициент диффузии дефекта задается выражением

$$D_d = D_0 \exp[-E_a / (k_B T)]; \quad (24)$$

$E_a$  – энергия активации.

Значения  $D_0$  и  $E_a$  для вакансий и междоузлий в пленке Ti, насыщенной дейтерием, не известны. Относительно диффузии дефектов в Ti в литературе приводятся сильно различающиеся данные (см., напр., [18, 19]). Неопределенной является также и температура  $T$  пленки в процессе ее эксплуатации (обычно  $T \sim 500 - 700$  К [1]). Используя для оценки значения предэкспоненциального фактора  $D_0 = 1.2 \times 10^{-1}$  см<sup>2</sup>·с<sup>-1</sup> и энергии активации  $E_a = 2$  эВ, приведенные в [18] для случая диффузии моновакансии в Ti, получаем при  $T = 700$  К оценку коэффициента диффузии  $D_d = 5.8 \times 10^{-16}$  см<sup>2</sup>·с<sup>-1</sup>  $\sim 10^{-15}$  см<sup>2</sup>·с<sup>-1</sup>. Для коэффициента диффузии вакансии  $D_d = 10^{-15}$  см<sup>2</sup>·с<sup>-1</sup> из (23) при  $\varepsilon = 10$  имеем  $t_m \sim 1$  год.

### 6. Возможность подавления ДД неустойчивости путем нанесения нанорельефа на поверхность раздела

Образование больших пор, удлиненных вдоль поверхности раздела пленка–подложка, приводит к отслоению пленки от подложки в местах расположения пор, что ограничивает время эксплуатации мишени значением порядка  $t_m$ .

Исходя из проведенного рассмотрения, можно предложить способ подавления ДД неустойчивости путем лазерно-индуцированного нанесения нанорельефа на поверхность подложки перед напылением пленки-мишени. Ожидается, что это приведет к уменьшению эффективного коэффициента латеральной диффузии точечных дефектов  $D_d$  вдоль границы раздела пленка–подложка. Для относительно мелкого нанорельефа это предположение можно сделать на основе аналогии между диффузией дефекта в эффективном потенциальном рельефе на поверхности с нанорельефом (рис.3) и подавленной диффузией адатома в потенциальном рельефе с барьерами Эрлиха–Швебея, создаваемыми ступеньками и террасами на поверхности кристалла (ср. с [20]).

Формирование нанорельефа поверхности металла при воздействии на нее коротких и ультракоротких лазерных импульсов исследовано в работах [3–8], а также в настоящей работе. В качестве источника лазерного излучения мы использовали волоконный Yb<sup>3+</sup>-лазер (Amplitude Systèmes), генерирующий на длине волны 1030 нм лазерные импульсы с длительностью 320 фс (по полувысоте), энергией 10 мкДж и пространственным поперечным распределением энергии, отвечающим TEM<sub>00</sub>-моду. В экспериментах лазерное излучение ослаблялось внерезонаторным калиброванным акустооптическим модулятором, преобразовывалось в излучение второй гармоники (длина волны 515 нм, длительность импульса 200 фс, энергия 4 мкДж) с помощью тонкого кристалла бората бария и фокусировалось стеклянной (BK-7) линзой с фокусным расстоянием 3.5 см на поверхность образца в пятно радиусом 20 мкм по уровню интенсивности 1/е. В качестве образцов использовались круглые пластины молибдена с толщиной 0.5 мм, диаметром 23 мм и механически полированной поверхностью. Образцы размещались на компью-

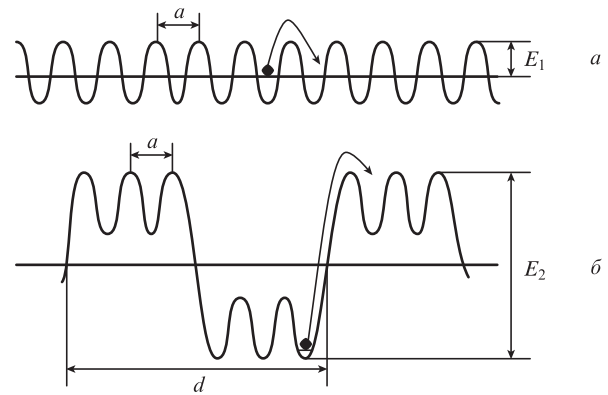


Рис.3. Схемы диффузии дефекта вдоль плоской границы раздела среды с постоянной кристаллической решетки  $a$  путем скачков через потенциальный барьер  $E_1$  ( $a$ ) и вдоль границы раздела среды с нанорельефом с относительно малой глубиной и периодом  $d$  ( $a < d < \Lambda_m$ ), где часть скачков происходит через потенциальный барьер  $E_2 > E_1$  и эффективный коэффициент диффузии  $D_{\text{eff}}(E_1, E_2) < D_d(E_1)$  ( $b$ ).

теризированной трансляционной платформе с шаговыми двигателями, обеспечивающими движение по трем осям со скоростью  $v = 1-6250$  мкм/с. Облучение образцов проводилось в трех режимах: при плотности энергии  $F_0 \approx 0.16$  Дж/см<sup>2</sup>, скорости сканирования  $v = 6.25$  мм/с, частоте следования импульсов  $f = 12.5$  кГц, длине волны  $\lambda = 1030$  нм и облучении в воздухе (образец 1); при  $F_0 \approx 0.20$  Дж/см<sup>2</sup>,  $v = 3.75$  мм/с,  $f = 17$  кГц,  $\lambda = 515$  нм и облучении в воздухе (образец 2); при облучении образца 3 под слоем изопропанола толщиной 1 мм в условиях, аналогичных условиям для образца 2. Данная лазерная установка принципиально позволяет работать с высокой частотой следования импульсов ( $f \leq 2$  МГц), обеспечивая высокую скорость записи нанорельефа на больших участках поверхности (рис.4,а).

Сформированные периодические поверхностные структуры (ППС) ориентированы всегда перпендикулярно вектору поляризации УКИ и имеют характерные периоды  $\Lambda \approx 420$  нм для  $\lambda = 1030$  нм (рис.4,б),  $\Lambda \approx 380$  нм для  $\lambda = 515$  нм в воздухе (рис.4,в) и  $\Lambda \approx 260$  нм для  $\lambda = 515$  нм в изопропанол (рис.4,з), зависящие главным образом от длины волны, плотности энергии, числа лазерных импульсов [21] и оптических характеристик контактирующей с поверхностью среды [5, 22]. В частности, уменьшение длины волны способствовало уменьшению периода ППС, облучение через слой изопропанола позволило также уменьшить период ППС в два раза (рис.4,в), а при плотности энергии УКИ, близкой к порогу формирования ППС, образовались ППС с периодом, меньшим половины длины волны излучения (рис.4,б). Глубина  $H$  бороздок ППС, полученных при  $\lambda = 1030$  нм, лежит в диапазоне 300–400 нм, а для  $\lambda = 515$  нм – в диапазоне 200–300 нм. Помимо одномерного рельефа, возможно также нанесение в изопропанол контрастной двумерной нанорешетки рельефа [23] с периодом  $\Lambda \approx 320$  нм для  $\lambda = 515$  нм (рис.5). Полученная глубина бороздок ППС ( $H > 200$  нм) достаточна для эффективного подавления ДД неустойчивости.

Эффективный латеральный коэффициент диффузии на поверхности с таким глубоким нанорельефом может уменьшаться за счет увеличения эффективной длины пути дефекта вдоль поверхности раздела. Если частица диффундирует на ровной поверхности с коэффициентом

диффузии  $D_d$ , то она проходит расстояние  $d$  вдоль поверхности за время  $t = d^2/D_d$ . Пусть теперь частица диффундирует на поверхности с прямоугольным нанорельефом, имеющим период  $d$  (глубина прямоугольных бороздок  $H = d$ , расстояние между бороздками и толщина бороздок одинаковы и равны  $d/2$ ). Чтобы пройти вдоль поверхности расстояние  $d$ , частице надо пройти вдоль модулированного рельефа расстояние  $3d$ . Она преодолевает это расстояние за время  $t_1 = 9d^2/D_d$ . Введем эффективный коэффициент латеральной диффузии на модулированной поверхности  $D_{\text{eff}} = d^2/t_1 = D_d/9$ , который на порядок меньше коэффициента диффузии на ровной поверхности. Уменьшение  $D_d$  приводит к увеличению времени развития ДД неустойчивости (см. формулу (23)) и подавлению образования ДД структуры. Из (23) следует, что время эксплуатации НГ увеличивается при этом на порядок.

По-видимому, наиболее перспективным с точки зрения подавления ДД неустойчивости является запись ППС с наименьшим периодом (рис.4,з и рис.5), т. к. в этом случае достигается наибольшая плотность барьеров для латеральной диффузии дефектов. Однако создание поверхностных наноструктур слишком малых размеров ( $H, \Lambda < 100$  нм) может не обеспечить необходимого подавления. Полученный нанорельеф (рис.4 и 5) достаточно устойчив к циклическим термическим нагрузкам, поскольку механизм его формирования напрямую связан с многократным локальным нагревом поверхности до температур, существенно превышающих порог плавления материала [22]. Таким образом, наноструктурирование по-

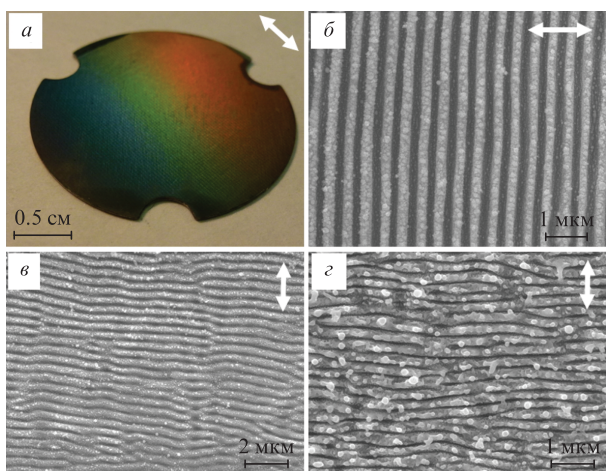


Рис.4. Фотография образца 1 из молибдена, сделанная под углом 45° (а), и СЭМ-изображения наноструктурированной поверхности образцов 1 (б), 2 (в) и 3 (з) из молибдена. Двухсторонние стрелки указывают направление поляризации УКИ. Цветной вариант рис.4,а помещен на сайте нашего журнала <http://www.quantum-electron.ru>.

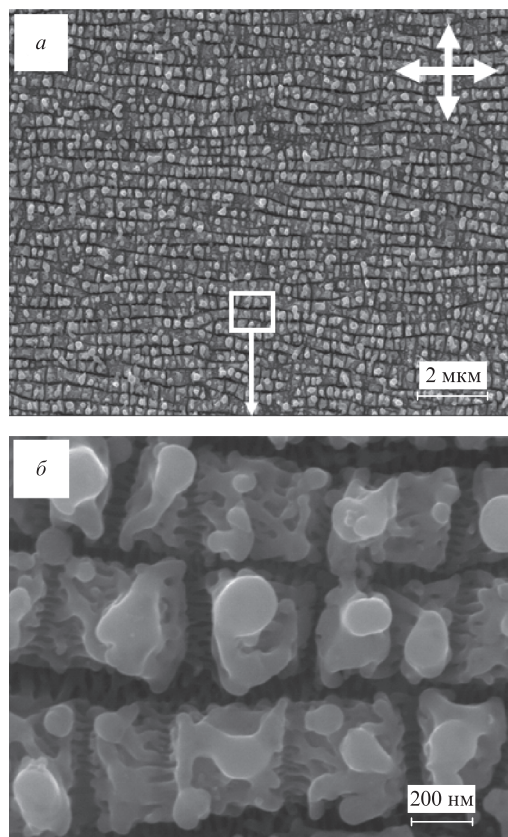


Рис.5. СЭМ-изображение поверхности образца 3 из молибдена, облученного путем его последовательного сканирования пучком УКИ во взаимно перпендикулярных направлениях (указаны белыми стрелками) под слоем изопропанола толщиной 1 мм при условиях, аналогичных условиям для образца 2 (а), и увеличенное изображение выделенного на рис.5,а участка (б).

верхности подложек катодов НГ под действием УКИ позволяет получить наноразмерные ППС, пригодные для исследования подавления радиационной деградации мишеней НГ.

## 7. Выводы

1. В облучаемой потоком дейтерия дейтерированной мишени возможно развитие ДД неустойчивости с образованием крупных (с латеральным размером  $\sim 10$  мкм) пор на границе раздела пленка–подложка.

2. Время образования такой ДД структуры уменьшается с ростом концентрации дефектов, порождаемых при облучении.

3. Образование крупных пор на границе раздела пленка–подложка может приводить к необратимой деградации мишени за счет отслоения пленки.

4. Развитие ДД неустойчивости можно задерживать (или подавлять) лазерно-индуцированным нанесением нанорельефа на поверхность подложки до напыления на нее пленки, что уменьшает эффективное значение коэффициента латеральной диффузии дефектов вдоль поверхности раздела.

5. С помощью фемтосекундных лазерных импульсов записаны массивы периодических наноструктур на поверхности молибдена, которые, как показывают оценки, способны подавлять формирование микропор при облучении образца потоком ионов дейтерия.

Авторы признательны РФФИ и ГК «Росатом» за финансовую поддержку в рамках проекта 12-02-13506-офи\_м\_РА.

- Monnin C., Bach P., Tulle P.A., van Rompay M., Ballanger A. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A*, **480**, 214 (2002).
- Emel'yanov V.I. *Laser Phys.*, **18**, 682 (2008).
- Бармина Е.В., Стратакис Э., Фотакис К., Шафеев Г.А. *Квантовая электроника*, **40**, 1012 (2010).
- Бармина Е.В., Барбероглу М., Зорба В., Симакин А.В., Стратакис Э., Фотакис К., Шафеев Г.А. *Квантовая электроника*, **39**, 89 (2009).
- Голосов Е.В., Емельянов В.И., Ионин А.А., Колобов Ю.Р., Кудряшов С.И., Лигачев А.Е., Новоселов Ю.Н., Селезнев Л.В., Сеницын Д.В. *Письма в ЖЭТФ*, **90**, 116 (2009).
- Ionin A.A., Kudryashov S.I., Makarov S.V., Seleznev L.V., Sinitsyn D.V., Ligachev A.E., Golosov E.V., Kolobov Yu.R. *Laser Phys. Lett.*, **10**, 056004 (2013).
- Ionin A.A., Kudryashov S.I., Makarov S.V., Rudenko A.A., Saltuganov P.N., Seleznev L.V., Sunchugasheva E.S. *Appl. Surf. Sci.*, **282**, 678 (2013).
- Кудряшов С.И., Ионин А.А., Макаров С.В., Салтуганов П.Н., Селезнев Л.В. Заявка на патент РФ №2013116605 от 12.04.13.
- Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М. *Теория упругости* (М.: Наука, 1987).
- Викторов И.А. *Звуковые поверхностные волны в твердых телах* (М.: Наука, 1981).
- Емельянов В.И. В сб.: *Нелинейные волны. Лекции на VII Всесоюзной школе по нелинейным волнам* (Горький, 1987; М.: Наука, 1989, с. 198).
- Емельянов В.И. *Квантовая электроника*, **28**, 2 (1999).
- Bottani C.E., Yacona M. *J. Phys.: Condens. Matter*, **1**, 8337 (1989).
- Dodson V.W., Tsao J.Y. *Appl. Phys. Lett.*, **51**, 1325 (1987).
- Kuramoto Y. *Chemical Oscillations, Waves and Turbulence* (Berlin: Springer, 1984).
- Sivashinsky G.I. *Ann. Rev. Fluid Mech.*, **15**, 179 (1983).
- Emel'yanov V.I., Seval'nev D.M. *Laser Phys.*, **21**, 566 (2011).
- Shang S.L., Hector L.G.Jr., Wang Y., Liu Z.K. *Phys. Rev. B*, **83**, 224104 (2011).
- Vogl G., Petry W., Flottmann T., Heiming A. *Phys. Rev. B*, **39**, 5025 (1989).
- Mussawisade K., Wichmann T., Kehr K.W. arXiv:cond-mat/9710026v1 (1997).
- Bonse J., Krüger J. *J. Appl. Phys.*, **108**, 034903 (2010).
- Голосов Е.В., Ионин А.А., Колобов Ю.Р., Кудряшов С.И., Лигачев А.Е., Новоселов Ю.Н., Селезнев Л.В., Сеницын Д.В. *ЖЭТФ*, **140**, 21 (2011).
- Barmina E.V., Serkov A.A., Stratakis E., Fotakis C., Stolyarov V.N., Stolyarov I.N., Shafееv G.A. *Appl. Phys. A*, **106**, 1 (2012).