

He, Au 离子辐照 AuCu₃ 致元素表面偏析

法涛 陈田祥 韩录会 莫川

Surface segregation of AuCu₃ by He⁺ and Au⁺ irradiation

Fa Tao Chen Tian-Xiang Han Lu-Hui Mo Chuan

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 65, 038201 (2016) DOI: 10.7498/aps.65.038201

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.038201>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2016/V65/I3>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

离子束刻蚀碲镉汞晶体的电学特性研究

Study on electrical properties of ion-beam-etched HgCdTe crystal

物理学报.2015, 64(11): 116102 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.116102>

基于蒙特卡洛和器件仿真的单粒子翻转计算方法

Calculation of single event upset based on Monte Carlo and device simulations

物理学报.2014, 63(19): 196102 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.196102>

低剂量率 ⁶⁰Co γ 射线辐照下 SOI MOS 器件的退化机理

Degradation mechanism of SOI NMOS devices exposed to ⁶⁰Co γ-ray at low dose rate

物理学报.2012, 61(24): 246101 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.61.246101>

辐照下背栅偏置对部分耗尽型绝缘层上硅器件背栅效应影响及机理分析

Back-gate bias effect on partially depleted SOI/MOS back-gate performances under radiation condition

物理学报.2012, 61(20): 206102 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.61.206102>

带有 n⁺ 深阱的三阱 CMOS 工艺中寄生 NPN 双极效应及其对电荷共享的影响

NPN bipolar effect and its influence on charge sharing in a tripe well CMOS technology with n⁺ deep well

物理学报.2012, 61(9): 096102 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.61.096102>

He, Au离子辐照AuCu₃致元素表面偏析*法涛^{1)2)†} 陈田祥³⁾ 韩录会¹⁾ 莫川¹⁾

1) (中国工程物理研究院材料研究所, 绵阳 621900)

2) (表面物理与化学重点实验室, 绵阳 621900)

3) (中国科学院高能物理研究所, 北京 100049)

(2015年9月22日收到; 2015年11月14日收到修改稿)

采用磁控溅射方法在单晶硅(111)衬底上制备了AuCu₃薄膜, 用2 MeV He离子和1 MeV Au离子对薄膜进行辐照, 用卢瑟福背散射对He, Au离子辐照前后AuCu₃薄膜近表面的成分变化进行了分析, 对不同离子辐照导致的表面元素偏析行为进行了研究. 结果表明: 当2 MeV He离子辐照时, 随着辐照剂量增大, 观察到样品近表面Au元素偏析的趋势; 当1 MeV Au离子辐照时, 随着辐照剂量增大, 观察到样品近表面Cu元素偏析的趋势, 与He离子辐照相反. 通过对He, Au离子在样品中产生的靶原子空位及其分布分析, 发现靶原子空位浓度分布的梯度是导致两种不同表面元素偏析趋势的原因, 空位扩散是其中的主要机理.

关键词: 离子辐照, 表面偏析, AuCu₃**PACS:** 82.80.Yc, 61.80.Jh, 68.35.Dv**DOI:** 10.7498/aps.65.038201

1 引言

合金的表面元素偏析现象是表面科学研究的重要课题^[1-7]. 由于表面原子排布和能量状态的特殊性, 合金的元素成分往往会区别于体相. 表面偏析行为对合金材料的多种表面行为和性质都会产生直接影响, 如合金的耐腐蚀性^[8-10]、抗氧化性^[11]、表面催化活性^[12]、表面力学性质^[13]等. 研究人员运用了光电子能谱^[14]、低能电子衍射^[15]、次级离子质谱^[16]等多种表面分析技术, 结合热力学计算^[4,17]、分子动力学模拟与蒙特卡罗计算等^[18-20]对合金表面偏析行为进行了研究.

引起合金表面偏析的因素大体上分为两类. 一部分合金体系由于自身处于热力学亚稳态, 随着时间变化通过析出物、相变等形式发生自身成分、结构的变化, 如一些过饱和固溶体. 除此以外, 多数合金的表面元素偏析行为都与使役环境相关, 如温

度^[21]、应力^[22]以及不同的溶质/溶剂性质等^[23,24]改变合金元素化学势的因素. 在辐照环境如反应堆中使用的合金材料^[25-28], 除承受高温、高压、强腐蚀等恶劣使役环境外, 还受到载能粒子的辐照. 合金中产生大量辐照导致的缺陷和损伤结构, 这些缺陷同样可能打破合金元素的化学势平衡, 使合金中的元素发生再分布, 从而导致合金的成分、结构和性能发生变化^[29-31].

然而, 不同研究人员的研究结果一致性并不高, 对同一种合金有时甚至会得到相反的表面偏析结论^[32,33], 这也反映出影响最终宏观偏析规律的因素是复杂的. Au-Cu体系是重要的基础二元合金系, 其电子结构和晶体结构相对简单, 但包含的结构类型和结构转变却比较完备, 相图上存在有序-无序转变和多相共存区, 是研究合金结构转化问题较好的体系. 同时, Au合金也是在电子电气工业中具有广泛应用的重要合金. 本文利用串列加速器产生的He⁺与Au⁺离子束模拟反应堆中两种代

* 国家自然科学基金青年科学基金(批准号: 11205135)、中国工程物理研究院科学发展基金(批准号: 2012B0301045)和国家高技术研究发展计划(批准号: 2013AA8041073)资助的课题.

† 通信作者. E-mail: tao_fa@qq.com

表性的带电粒子辐射, 对 Au-Cu 二元合金进行不同离子、不同剂量辐照, 结合离子束表面分析技术来研究不同种类离子辐照二元合金诱发的表面偏析现象.

2 研究方法

本文采用双靶磁控溅射离子镀膜机, 在单晶 Si(111) 表面沉积了 Au-Cu 薄膜. 通过调节 Ar 气氛分压, 控制薄膜沉积速率; 分别调节 Au, Cu 靶的溅射功率, 调控薄膜成分. 用 X 射线衍射 (XRD) 对薄膜的结构进行表征.

采用 SRIM2012 软件^[34] 模拟得到了 2 MeV He^+ 和 1 MeV Au^+ 在样品中的射程、分布和产生的原子移位 (ion displacements) 分布特征, 根据软件模拟得到的每原子平均移位 (dpa), 确定相应的离子辐照参数.

离子辐照实验在北京大学核物理与核技术国家重点实验室的 2×1.7 MV 串列静电加速器装置上进行. 根据模拟结果确定的辐照参数进行了两种不同离子、各两个剂量的辐照, 分别是: 2 MeV He^+ , 剂量为 $3 \times 10^{15}/\text{cm}^2$ 和 $1.5 \times 10^{16}/\text{cm}^2$, 辐照温度为室温; 1 MeV Au^+ , $1 \times 10^{13}/\text{cm}^2$ 和 $1 \times 10^{14}/\text{cm}^2$ 两种剂量的辐照实验, 辐照温度为室温. 对辐照前后的样品, 分别采用卢瑟福背散射 (RBS), XRD 等方法对薄膜及近表面的成分变化进行表征.

3 实验结果

3.1 Au-Cu 薄膜制备

通过调节薄膜沉积过程中的 Ar 气氛分压, 控制薄膜沉积速率, 得到厚度约 300 nm 的 Au-Cu 薄膜; 通过分别调节 Au, Cu 靶的溅射功率, 使 Au, Cu 原子比例达到 $\text{Au} : \text{Cu} = 1 : 3$. 在这一原子比下, 合金将倾向于形成有序的点阵结构 (如图 1(a) 所示) AuCu_3 , 其中 Au 原子占据立方体的顶点, Cu 原子占据面心. 图 1(b) 所示为不同 Au, Cu 原子比的薄膜样品的 XRD 谱, 可以看出不同 Au, Cu 原子比对薄膜的晶格常数有明显影响, 本实验选择的 AuCu_3 相薄膜纯净度较好, 未看到明显的杂相.

3.2 辐照模拟

本文分别选择两种典型的离子束: 高能轻离子与低能重离子来模拟反应堆工况下不同的典型

带电粒子辐照. 能量为 2 MeV 的 He^+ 代表了典型的高能轻离子, 在此能量下, 离子的能量质量比为 0.5 MeV/u, He^+ 在样品中的能量损失方式以电子能损为主; 能量为 1 MeV 的 Au^+ 代表了典型的低能重离子, 在此能量下, 离子的能量质量比为 0.005 MeV/u, Au^+ 在样品中的能量损失方式以核能损为主.

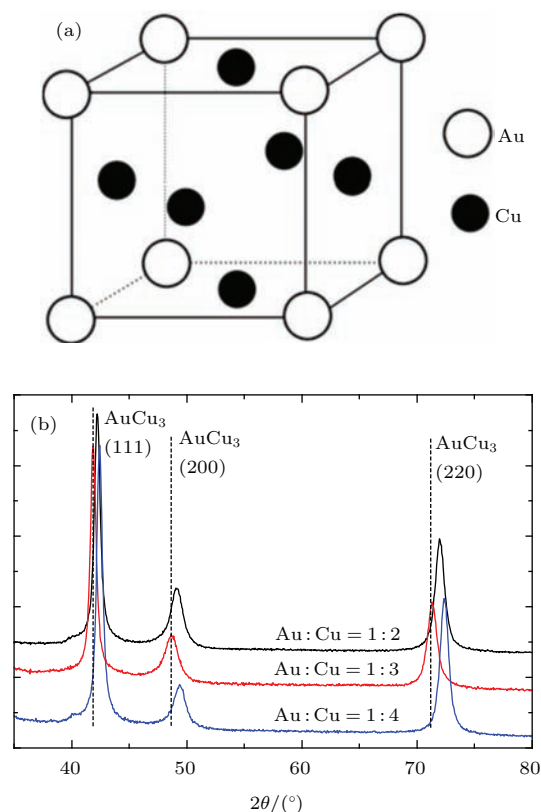
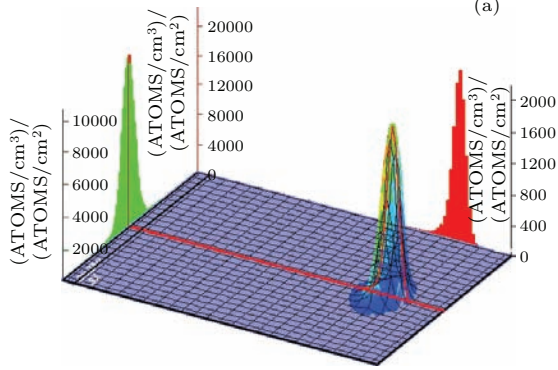


图 1 (a) AuCu_3 晶体面心立方结构; (b) 不同 Au-Cu 原子比的薄膜 XRD 谱

Fig. 1. (a) Face center cubic structure of AuCu_3 ; (b) XRD patterns of samples with different Au-Cu ratios.

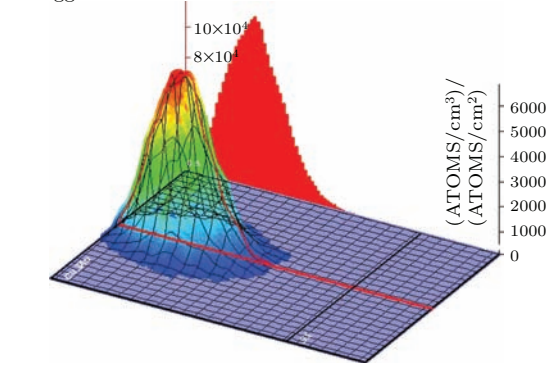
使用 SRIM2012 软件模拟了 2 MeV He^+ 和 1 MeV Au^+ 在 AuCu_3 样品中的射程、分布和产生的原子移位分布. 从模拟可以看出, 2 MeV He^+ 在样品中的射程约为 6.8 μm (图 2(a)), 产生的原子移位主要在射程末端的布拉格峰范围内 (图 2(b)), 表明在 AuCu_3 薄膜厚度范围内 (300 nm), 直接产生的原子移位很少. 对薄膜厚度范围内的靶原子移位分布模拟 (图 2(c)) 表明, He 离子辐照在薄膜中产生了比较均匀分布的 Au, Cu 原子空位, 并且 Au, Cu 原子空位比与其元素比相近, 为 1 : 3, 只是在极靠近表面的约 10 nm 厚度范围内, Au, Cu 原子空位浓度明显降低, 与整个薄膜的 Au, Cu 原子空位浓度形成梯度.

Ion distribution
Ion range = 6.86 μm Skewness = -8.014
Straggle = 2599 $\text{\AA}$ Kurtosis = 145.441



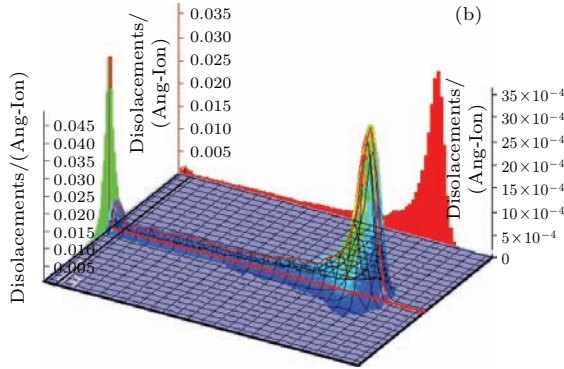
Plot Window goes from 0 $\text{\AA}$ to 8.3 μm ; cell width = 830 $\text{\AA}$
Press PAUSE TRIM to speed plote. Rotate plot with Mouse.
Ion = He (2 MeV)

Ion distribution
Ion range = 899 $\text{\AA}$ Skewness = 0.235
Straggle = 343 $\text{\AA}$ Kurtosis = 2.861



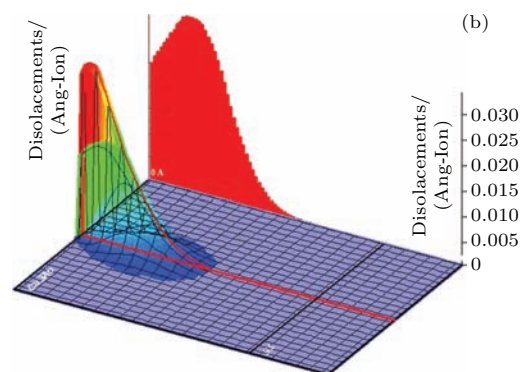
Plot Window goes from 0 $\text{\AA}$ to 4000 $\text{\AA}$; cell width = 40 $\text{\AA}$
Press PAUSE TRIM to speed plote. Rotate plot with Mouse.
Ion = He (1 MeV)

Total displacements
Total displacies = 306/Ion
Total vacancies = 283/Ion
Replacement collisions = 23/Ion



Plot Window goes from 0 $\text{\AA}$ to 8.3 μm ; cell width = 830 $\text{\AA}$
Press PAUSE TRIM to speed plote. Rotate plot with Mouse.
Ion = He (2 MeV)

Total displacements
Total displacies = 9540/Ion
Total vacancies = 9540/Ion
Replacement collisions = 0/Ion



Plot Window goes from 0 $\text{\AA}$ to 4000 $\text{\AA}$; cell width = 40 $\text{\AA}$
Press PAUSE TRIM to speed plote. Rotate plot with Mouse.
Ion = He (1 MeV)

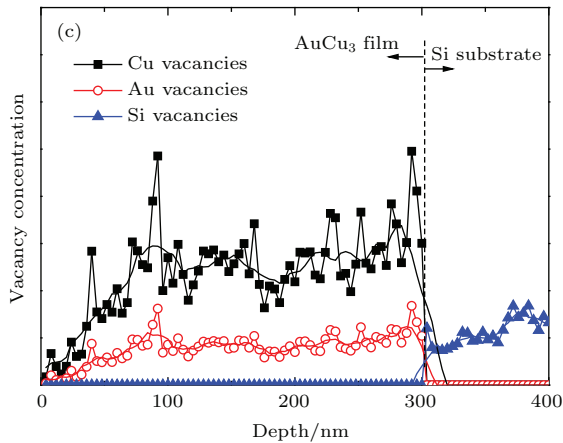


图2 (网刊彩色) 2 MeV He^+ 在 AuCu_3 中的 (a) 射程分布, (b) 总原子移位分布, (c) 薄膜中的 Au, Cu 原子空位分布

Fig. 2. (color online) AuCu_3 irradiated by 2 MeV He^+ : (a) Range distribution of He^+ ; (b) total displacements distribution; (c) Au and Cu vacancies distribution in film.

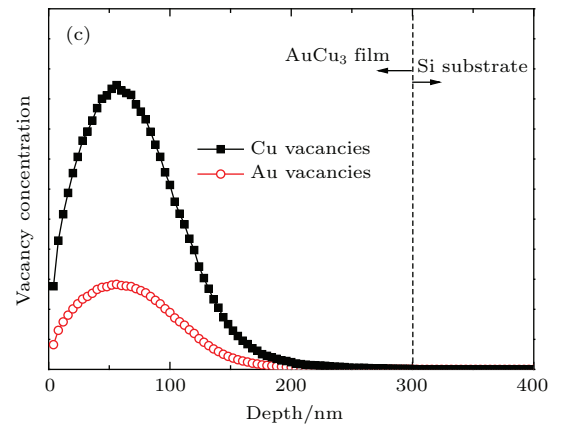


图3 (网刊彩色) 1 MeV Au^+ 在 AuCu_3 中的 (a) 射程分布, (b) 总原子移位分布, (c) 薄膜中的 Au, Cu 原子空位分布

Fig. 3. (color online) AuCu_3 irradiated by 1 MeV Au^+ : (a) Range distribution of Au^+ ; (b) total displacements distribution; (c) Au and Cu vacancies distribution in film.

1 MeV Au^+ 在样品中的射程约为 90 nm (图 3(a)), 产生的原子移位也主要分布在样品近表面 100 nm 以内 (图 3(b)), 这表明在 AuCu_3 薄膜厚度范围内直接产生了大量原子移位. 对靶原子移位分布模拟 (图 3(c)) 表明, Au 离子辐照在薄膜中形成了与布拉格峰形状类似的 Au , Cu 原子空位分布, Au , Cu 原子空位比与其元素比相近, 为 1 : 3. 这意味着在空位集中的薄膜近表面 100 nm 范围内, 形成高浓度的 Au , Cu 原子空位, 在 100—300 nm 的范围内, Au , Cu 原子空位浓度急剧降低到几乎为零, 两个区域间形成很高的空位浓度梯度.

3.3 离子辐照前后样品的表征

辐照前后, 利用 RBS 技术对样品近表面的元素成分进行了分析. 用 SIMNRA 软件对 RBS 谱进行拟合后得到薄膜不同深度的 Au , Cu 元素含量比, 列于表 1. 图 4 为 He^+ 辐照后 AuCu_3 薄膜 RBS 谱与近表面元素比变化趋势. 其中 $X_{\text{Au/Cu}}^s$ 为样品表面 50—70 nm 范围内 Au , Cu 原子比, $X_{\text{Au/Cu}}^B$ 为薄膜平均 Au , Cu 原子比. 可以看出, 辐照前, 样品表面 Au , Cu 原子比 $X_{\text{Au/Cu}}^s$ 小于整个薄膜的平均 Au , Cu 原子比 $X_{\text{Au/Cu}}^B$; 经过 He^+ 辐照后, $X_{\text{Au/Cu}}^s$ 已经

变得与 $X_{\text{Au/Cu}}^B$ 相当. 这说明, 表面层 Au 元素的相对含量变大了.

从 RBS 谱及拟合结果可以看出, He^+ 辐照后样品近表面 Au 元素相对含量增大, Au , Cu 原子比例趋向于薄膜体相的 1 : 3. 考虑到 He 原子质量远小于靶原子核, 溅射效应可以忽略 (Cu 原子小于 0.001 atom/ion). 因此, 可以认为, 导致 Au 元素相对含量略有增大的原因是 Au 元素向表面偏析.

图 5 为 Au^+ 辐照后 AuCu_3 薄膜 RBS 谱与近表面元素比变化趋势. 用 SIMNRA 软件对 RBS 谱进行拟合后得到薄膜不同深度的 Au , Cu 元素含量比, 列于表 2.

表 1 He^+ 辐照前后 AuCu_3 薄膜平均与表面 Au , Cu 原子比

Table 1. Au - Cu ratio of average and surface of the film before and after He^+ irradiation.

辐照剂量/ cm^2	薄膜厚度/nm	$\text{Au} : \text{Cu}$ 原子比	
		平均	表面
辐照前	328	0.322	0.247
3×10^{15}	341	0.283	
1×10^{16}	329	0.306	

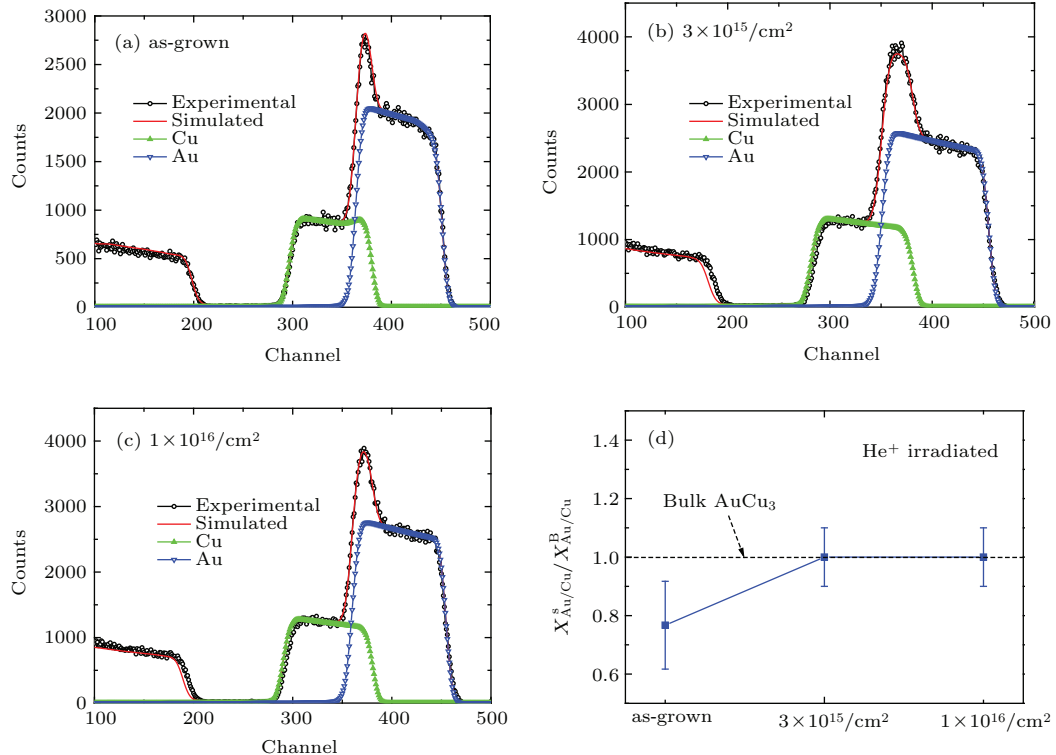


图 4 (网刊彩色) He^+ 辐照前后 AuCu_3 薄膜 RBS 谱 (a) 辐照前; (b) $3 \times 10^{15}/\text{cm}^2$; (c) $1 \times 10^{16}/\text{cm}^2$; (d) 辐照前后样品近表面元素比变化

Fig. 4. (color online) RBS spectrums of film before and after He^+ irradiation with different fluence: (a) As-grown; (b) $3 \times 10^{15}/\text{cm}^2$; (c) $1 \times 10^{16}/\text{cm}^2$; (d) Au - Cu atom ratio trend near surface.

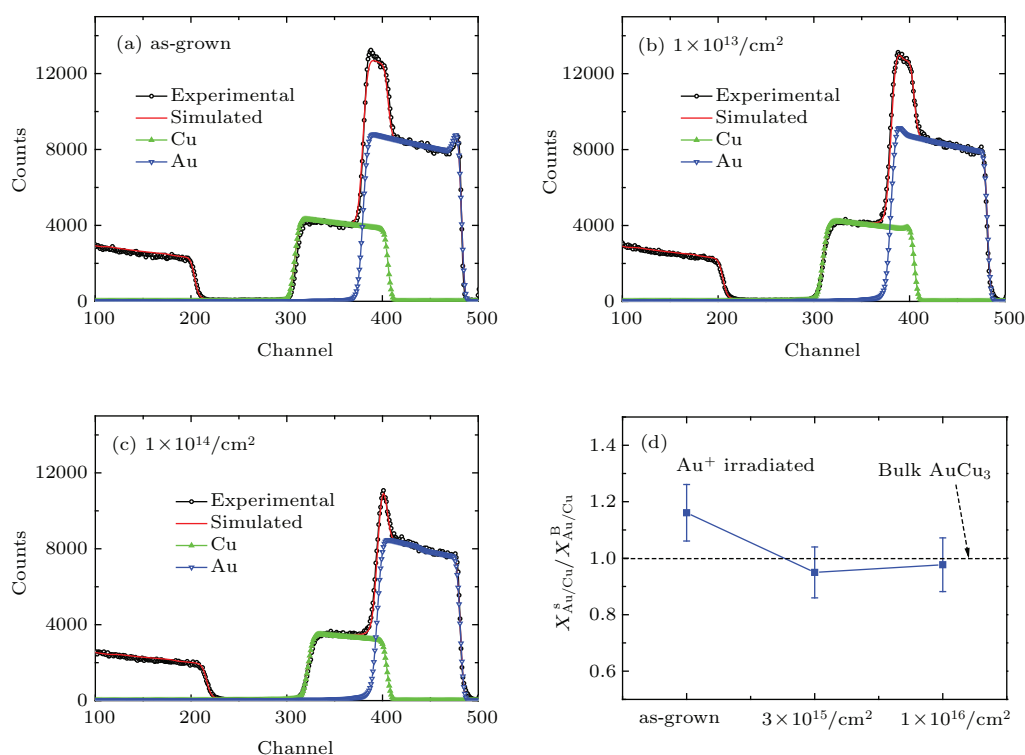


图5 (网刊彩色) Au^+ 辐照前后 AuCu_3 薄膜 RBS 谱 (a) 辐照前; (b) $1 \times 10^{13}/\text{cm}^2$; (c) $1 \times 10^{14}/\text{cm}^2$; (d) 辐照前后样品近表面元素比变化

Fig. 5. (color online) RBS spectrums of film before and after Au^+ irradiation with different fluence: (a) As-grown; (b) $1 \times 10^{13}/\text{cm}^2$; (c) $1 \times 10^{14}/\text{cm}^2$; (d) Au-Cu atom ratio trend near surface.

表2 Au^+ 辐照前后 AuCu_3 薄膜平均与表面 Au, Cu 原子比
Table 2. Au-Cu ratio of average and surface of the film before and after Au^+ irradiation.

辐照剂量/ cm^2	薄膜厚度/nm	Au : Cu 原子比	
		平均	表面
辐照前	351	0.292	0.339
1×10^{13}	343	0.298	0.283
1×10^{14}	295	0.347	0.339

从 RBS 谱及拟合结果中可以看到, Au^+ 辐照后样品近表面 Au 元素相对含量相比体相逐渐减少. 考虑到 Au 离子对靶的总溅射产额较高 (约 20 atoms/ion), 对溅射掉的薄膜厚度做一估算. 对 $1 \times 10^{14}/\text{cm}^2$ 剂量辐照的样品, 溅射掉薄膜质量厚度约为 $2 \times 10^{15}/\text{cm}^2$, 整个薄膜质量厚度约为 $2250 \times 10^{15}/\text{cm}^2$, 因此溅射掉的薄膜厚度可以忽略. 可以认为, 样品近表面 Au 元素相对含量的减少源于 Cu 元素向样品表面的扩散.

4 讨 论

上述实验结果表明, He^+ 与 Au^+ 对 AuCu_3 薄膜辐照后, 产生了两种不同的表面元素偏析趋势.

He^+ 辐照后表面 Au 元素含量增大, Au^+ 辐照后表面 Cu 元素含量增大. 为了解释这种现象, 需要再次考虑两种离子在薄膜中产生的不同空位深度分布梯度.

从图 2(c) 的模拟中可以看出, 2 MeV He^+ 在整个薄膜中产生了比较均匀且平缓分布的 Au, Cu 原子空位, 但在靠近表面处 Au, Cu 原子空位浓度明显降低, 与整个薄膜中的 Au, Cu 原子空位浓度形成梯度. 而离子对材料的辐照通常都伴随着热效应, 在热效应作用下, 辐照产生的靶原子空位迁移扩散会增强, 从浓度高处向浓度低处扩散, 等效于相应的原子从空位浓度低处向空位浓度高处扩散, 可以用简单的二组元一维同向扩散模型来理解. 从微观来看, 对于 AuCu_3 薄膜, 其晶格为 fcc 结构, Au, Cu 原子体积相差不大, 直接换位机理和间隙扩散机理都不适用. 加之离子辐照产生了大量空位, 空位扩散机理是其扩散的主要机理. Cu 原子的质量远小于 Au 原子的质量, 扩散速率要大于 Au 原子. 因此, 在近表面 Au, Cu 原子空位浓度较低的情况下, Au, Cu 原子均从表面向薄膜内部扩散, 但 Cu 原子扩散得更快, 导致近表面 Au 原子的相对含量增大.

在图 3(c) 的模拟中, 1 MeV Au⁺ 在薄膜近表面约 100 nm 范围内形成了浓度很高、与布拉格峰形状类似的 Au, Cu 原子空位分布, 从 100—300 nm 范围内, Au, Cu 原子空位浓度急剧降低到几乎为零. 这一空位浓度梯度与 He⁺ 辐照后在薄膜内形成的靶原子空位浓度恰好相反. 在辐照热效应作用下, Au, Cu 原子均从薄膜内部向表面扩散, 但由于 Cu 原子扩散得更快, 导致近表面 Cu 原子的相对含量增大.

5 结 论

本文分别使用 2 MeV He⁺ 与 1 MeV Au⁺ 离子束对 AuCu₃ 薄膜进行辐照, 研究了不同离子辐照后 AuCu₃ 薄膜近表面的元素偏析现象. 研究发现, He⁺ 与 Au⁺ 辐照在 AuCu₃ 薄膜中产生了两种相反的靶原子空位浓度分布, 在辐照热效应作用下, Au, Cu 原子均从空位深度低处向空位浓度高处扩散, 由于 Au, Cu 原子的扩散速率不一致, 最终导致宏观上两种不同的表面元素偏析效应.

上述结果为我们研究复杂辐照场中材料的多因素综合辐照效应给予了启示. 在复杂辐照场中可能同时存在多种辐照源, 其协同辐照效应往往不能看成单一因素辐照效应的简单叠加. 我们的研究表明, 不同的辐照离子, 如果其在材料中产生的空位浓度分布相似, 则其诱发的元素偏析行为也相似, 其共同辐照的结果表现为辐照诱发表面偏析效应增强; 如果其在材料中产生的空位浓度不同, 尤其如本文实验所展示的, 产生了相反的空位浓度分布, 则其诱发的元素偏析行为将互相抵消, 共同辐照的结果表现为辐照诱发表面偏析效应抑制.

感谢北京大学物理学院姚淑德教授的讨论和指导, 感谢马宏骥老师进行了离子束辐照实验.

参考文献

- [1] Burton J J, Hyman E, Fedak D G 1975 *J. Catal.* **37** 106
- [2] Lea C, Seah M P 1975 *Surf. Sci.* **53** 272
- [3] Abraham F F, Brundle C R 1981 *J. Vacuum Sci. Technol.* **18** 506
- [4] Chelikowsky J R 1984 *Surf. Sci. Lett.* **139** L197
- [5] Good B, Bozzolo H G, Abel P B 2000 *Surf. Sci.* **454** 602
- [6] Wang B, Zhang J M, Liu Y D, Gan X Y, Yin B X, Xu K W 2011 *Acta Phys. Sin.* **60** 016601 (in Chinese) [王博, 张建民, 甘秀英, 殷保祥, 路彦冬, 徐可为 2011 物理学报 **60** 016601]

- [7] Wang D, Gao N, Gao F, Wang Z G 2014 *Chin. Phys. Lett.* **31** 096801
- [8] Busby J T, Was G S, Kenik E A 2002 *J. Nucl. Mater.* **302** 20
- [9] Fukuya K, Nakano M, Fujii K, Torimaru T 2004 *J. Nucl. Sci. Technol.* **41** 594
- [10] Allen T R, Cole J I, Gan J, Was G S, Dropek R, Kenik E A 2005 *J. Nucl. Mater.* **342** 90
- [11] Volker E, Williams F J, Calvo E J, Jacob T, Schiffrin D J 2012 *Phys. Chem. Chem. Phys.* **14** 7448
- [12] Adams R D 2000 *J. Organometal. Chem.* **600** 1
- [13] Datta A, Duan Z, Wang G 2012 *Computat. Mater. Sci.* **55** 81
- [14] Vöcker E, Williams F J, Jacob T, Schiffrin D J 2014 *J. Alloys Comp.* **586** 475
- [15] Burton J J, Helms C R, Polizzotti R S 1976 *J. Chem. Phys.* **65** 1089
- [16] Kailas L, Audinot J N, Migeon H N, Bertrand P 2006 *Composite Interfaces* **4** 423
- [17] Foiles S M 1985 *Phys. Rev. B: Condens. Matter* **32** 7685
- [18] Zhang B, Taglauer E, Shu X, Hu W, Deng H 2005 *Phys. Status Solidi Appl. Mater.* **202** 2686
- [19] Soisson F 2006 *J. Nucl. Mater.* **349** 235
- [20] Evteev A V, Levchenko E V, Belova I V, Murch G E 2012 *Phys. Metals Metallogr.* **113** 1202
- [21] Tsai W F, Liang J H, Kai J J 2005 *Nucl. Instrum. Methods in Phys. Res. Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* **241** 573
- [22] Sorokin M V, Ryazanov A I 2006 *J. Nucl. Mater.* **357** 82
- [23] Hackett M J, Busby J T, Miller M K, Was G S 2009 *J. Nucl. Mater.* **389** 265
- [24] Hackett M J, Najafabadi R, Was G S 2009 *J. Nucl. Mater.* **389** 279
- [25] Gupta G, Jiao Z, Ham A N, Busby J T, Was G S 2006 *J. Nucl. Mater.* **351** 162
- [26] Lu Z, Faulkner R G, Sakaguchi N, Kinoshita H, Takahashi H, Flewitt P E J 2006 *J. Nucl. Mater.* **351** 155
- [27] Hackett M J, Busby J T, Was G S 2008 *Metall. Mater. Trans. a: Phys. Metall. Mater. Sci.* **39A** 218
- [28] Wharry J P, Jiao Z, Shankar V, Busby J T, Was G S 2011 *J. Nucl. Mater.* **417** 140
- [29] Giacobbe M J, Rehn L E, Lam N Q, Okamoto P R, Funk L, Baldo P, McCormick A, Stubbins J F 1997 *1997 MRS Fall Meeting & Exhibit: Atomistic Mechanisms in Beam Synthesis and Irradiation of Materials* Boston, Massachusetts Dec, 1–5 1997
- [30] Wang L M, Wang S X, Ewing R C, Meldrum A, Birtcher R C, Provencio P N, Weber W J, Matzke H 2000 *Mater. Sci. Eng. a: Struct. Mater. Propert. Microstruct. Process.* **286** 72
- [31] Jiao Z, Was G S 2011 *Acta Mater.* **59** 1220
- [32] Watanabe K, Hashiba M, Yamashina T 1977 *Surf. Sci.* **69** 721
- [33] Wandelt K, Brundle C R 1981 *Phys. Rev. Lett.* **46**
- [34] Ziegler J F 1985 *The Stopping and Range of Ions in Matter* (Pergamon: Pergamon Press)

Surface segregation of AuCu₃ by He⁺ and Au⁺ irradiation*

Fa Tao^{1)2)†} Chen Tian-Xiang³⁾ Han Lu-Hui¹⁾ Mo Chuan¹⁾

1) (Institute of Materials, China Academy of Engineering Physics, Mianyang 621900, China)

2) (Science and Technology on Surface Physics and Chemistry Laboratory, Mianyang 621900, China)

3) (Institute of High Energy Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

(Received 22 September 2015; revised manuscript received 14 November 2015)

Abstract

Surface segregation is a significant phenomenon due to its influence on many surface processes, such as corrosion, oxidation and catalysis. Defects and vacancies produced by ion irradiation in alloys used in reactors or other radiation environments may also induce surface segregation. In this work, we deposit AuCu₃ film on a Si(111) substrate by magnetic sputtering. He⁺ and Au⁺ produced by pelletron are used to simulate radiation fields in reactors, and surface segregation induced by ion irradiation is investigated. SRIM software is used to simulate ion range and displacements produced in sample. Rutherford backscattering spectrometry is used to determine concentration changes near the surface of sample before and after irradiation. The results show that two kinds of ion irradiations lead to different surface segregation trends. When irradiated by 2 MeV He⁺, Au elements are segregated at the surface of sample. Oppositely, when irradiated by 1 MeV Au⁺, Cu elements are observed at the surface of sample. After analysis and discussion, we consider that this phenomenon is induced by different vacancy distributions by He⁺ and Au⁺ irradiation. 2 MeV He⁺ produced Au and Cu vacancies are distributed in whole film from surface to substrate smoothly, except very near the surface the concentration of vacancies has an obvious reduction. As a result, a gradient of the vacancy concentration is formed between the surface and the interior of the film. As the concentration of vacancies on the surface is lower than in interior, it would lead to vacancy diffusion from interior to surface, equivalent to diffusions of Cu and Au atoms along the opposite directions. Because of lighter atomic mass, Cu atom has a faster diffusion rate than Au atom. As a result, the concentration of Au atoms near the surface increases. Unlike He⁺, Au⁺ produces a mass of vacancies near the surface of the film, consistent with the Bragg peak by energy deposition of Au⁺, but decreases rapidly inside the film. It leads to a gradient of the vacancy concentration from surface to interior of the film. When vacancies diffuse from surface to interior, Cu and Au atoms diffuse from interior to surface, the lighter Cu atom concentration increases faster than Au atom concentration. Our research results explain the different segregation trends by light ion with higher energy and heavy ion with lower energy. It may help to understand the surface segregation of alloys used in complex irradiation field.

Keywords: ion irradiation, surface segregation, AuCu₃

PACS: 82.80.Yc, 61.80.Jh, 68.35.Dv

DOI: 10.7498/aps.65.038201

* Project supported by the Young Scientists Fund of the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11205135), the Science and Technology Development Fund of the China Academy of Engineering Physics (Grant No. 2012B0301045) and the National High Technology Research and Development Program of China (Grant No. 2013AA8041073).

† Corresponding author. E-mail: tao_fa@qq.com