

强脉冲离子束辐照金属材料烧蚀产物特性分析

张洁 钟昊玟 沈杰 梁国营 崔晓军 张小富 张高龙 颜莎 喻晓 乐小云

Characteristics of metal ablation product by intense pulsed ion beam irradiation

Zhang Jie Zhong Hao-Wen Shen Jie Liang Guo-Ying Cui Xiao-Jun Zhang Xiao-Fu Zhang Gao-Long Yan Sha Yu Xiao Le Xiao-Yun

引用信息 Citation: [Acta Physica Sinica](#), 66, 055202 (2017) DOI: 10.7498/aps.66.055202

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.055202>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2017/V66/I5>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

[多能复合谱电子束与X射线能量沉积剖面的等效性](#)

[Equivalence of energy deposition profile in target between electron beam of multi-energy composite spectrum and X-ray](#)

物理学报.2017, 66(2): 025202 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.025202>

[强流电子束入射角二维分布测量方法](#)

[A method of measuring the incidence angle of intense electron beam](#)

物理学报.2015, 64(24): 245203 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.245203>

[强脉冲离子束辐照薄金属靶的热力学过程研究](#)

[Distribution and evolution of thermal field induced by intense pulsed ion beam on thin metal target](#)

物理学报.2015, 64(17): 175204 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.175204>

[脉冲激光辐照液滴锡靶等离子体极紫外辐射的实验研究](#)

[Experimental study on laser produced tin droplet plasma extreme ultraviolet light source](#)

物理学报.2015, 64(7): 075202 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.075202>

[多层纳米AlGaN薄膜制备及其场发射性能](#)

[Preparations and field emission properties of multilayer AlGaN nanofilm](#)

物理学报.2016, 65(23): 236803 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.236803>

[基底表面纳米织构对非晶四面体碳膜结构和摩擦特性的影响研究](#)

[Effect of ion-beam surface modification technology on the variation of surface texture](#)

物理学报.2015, 64(3): 036801 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.036801>

强脉冲离子束辐照金属材料烧蚀产物特性分析*

张洁¹⁾²⁾ 钟昊玟¹⁾²⁾ 沈杰¹⁾²⁾ 梁国营¹⁾²⁾ 崔晓军¹⁾²⁾ 张小富¹⁾²⁾
张高龙¹⁾²⁾ 颜莎³⁾ 喻晓¹⁾²⁾ 乐小云^{1)2)†}

1) (北京航空航天大学物理科学与核能工程学院, 北京 100191)

2) (北京航空航天大学, 先进核能材料与物理北京市重点实验室, 北京 100191)

3) (北京大学重离子物理研究所, 北京 100871)

(2016年10月26日收到; 2016年12月1日收到修改稿)

强脉冲离子束作为一种闪光热源在材料表面改性方面具有广泛的应用。烧蚀效应对于强脉冲离子束与物质相互作用以及强脉冲离子束薄膜沉积过程具有重要的影响。因此, 分析强脉冲离子束的烧蚀过程和机理对于优化其应用具有重要意义。为了研究强脉冲离子束的烧蚀产物特性, 采用 $1.2\text{--}1.5 \text{ J/cm}^2$ 的强脉冲离子束辐照纯锌靶材, 并使用单晶硅片收集辐照过程中产生的烧蚀产物。通过扫描电子显微镜、能谱仪和高精度天平的分析与测量, 得到了烧蚀产物的表面形貌和相关特性等实验结果。结合实验和有限元模拟计算得到的材料表面温度场分布演化结果, 可以证明在强脉冲离子束辐照锌靶材的烧蚀过程中会有气态、液态和固态三种不同状态的烧蚀产物产生。

关键词: 强脉冲离子束, 烧蚀, 烧蚀产物, 相互作用

PACS: 52.59.-f, 68.55.-a, 79.20.Rf

DOI: 10.7498/aps.66.055202

1 引言

强脉冲离子束(intense pulsed ion beam, IPIB)的研究最初起源于20世纪70年代后期对于轻离子束惯性约束核聚变的研究^[1]。随着强脉冲离子束加速器系统的发展以及束流产生和传输技术的进步, 对于IPIB的研究逐渐聚焦到了在短时间内将高能量输入材料来引起材料特性的改变上。目前IPIB在材料表面改性方面具有广泛的应用以及良好的发展前景^[2-5]。

IPIB作为一种闪光热源, 具有脉冲时间短、能量密度高等特点。当作用于材料表面时, IPIB能够在极短的时间内($<1 \mu\text{s}$)将束流能量沉积在材料的表层($<10 \mu\text{m}$), 可以实现材料温度的快速上升(温度上升速率 $10^8\text{--}10^{11} \text{ K/s}$), 从而使材料发生熔化、汽化和烧蚀等现象。烧蚀过程是IPIB与材料相互作用的重要组成部分, 也是IPIB材料表面改性

和薄膜沉积技术的应用基础。虽然已经有了一些使用IPIB烧蚀效应实现不同材料薄膜沉积的工作报道^[6-8], 但是目前对于IPIB的烧蚀机理和烧蚀产物特性还不十分清晰。分析IPIB烧蚀机理和烧蚀过程有助于理解IPIB与物质相互作用过程, 以及实现对于IPIB材料改性技术的优化。本文通过实验与模拟计算相结合的方式分析了强脉冲离子束的烧蚀过程以及烧蚀产物的特点。结果有助于理解IPIB烧蚀金属材料机理。

2 实验

IPIB辐照实验在俄罗斯托木斯克理工大学高技术研究所的TEMP-4M强脉冲离子束加速器上进行。IPIB由磁绝缘二极管产生, 离子组成为85%的Cⁿ⁺和15%的H⁺。图1为TEMP-4M加速器二极管加速电压、总电流和束流密度的典型波形曲

* 国家自然科学基金(批准号: 11175012)和国家科技重大专项(批准号: 2013GB109004)资助的课题。

† 通信作者。E-mail: xyle@buaa.edu.cn

线^[9], 其中加速电压峰值为250 kV, 电流密度峰值为150 A/cm², 脉冲宽度为120 ns. IPIB束斑形状为近椭圆形, 水平方向直径为6 cm, 垂直方向为12 cm, 束流能量密度为0—3.5 J/cm².

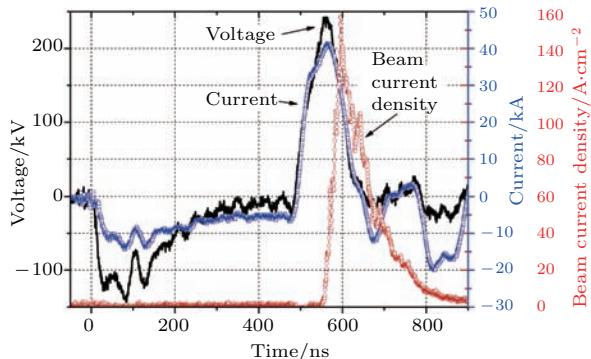


图1 (网刊彩色) TEMP-4M 加速器二极管电压、电流和束流密度曲线

Fig. 1. (color online) Diode voltage, current and beam current density of TEMP-4M accelerator.

辐照实验中采用纯度为99.99%的Zn靶材, 尺寸为15 mm × 15 mm × 1 mm, 抛光和超声清洗后放置在如图2所示的烧蚀产物收集装置上进行辐照。靶材与垂直方向夹角为45°, 直径为5 cm单晶Si片放置于样品下方3 cm处用以接收IPIB辐照Zn靶材过程中产生的烧蚀产物。IPIB束流能量密度通过红外成像诊断系统获得^[10–12], 辐照实验时的IPIB束流能量密度分布红外诊断结果如图3所示。Zn靶材位于束流中心位置, 即图3中黑色方框所示区域。由于辐照时Zn靶材与垂直放置的不锈钢红外诊断靶间夹角为45°, 因此辐照到Zn靶材上的束流能量密度为红外成像诊断结果在Zn靶材方向上的投影, 即为1.2—1.5 J/cm²。Zn靶材和单晶Si片在辐照前后的质量由测量精度为1 μg的RADWAG MYA 21.4Y天平称量获得。样品扫描电子显微镜(SEM)表面形貌和能谱仪(EDS)

成分分析在FEI Nova NanoSEM 430扫描电镜上进行。

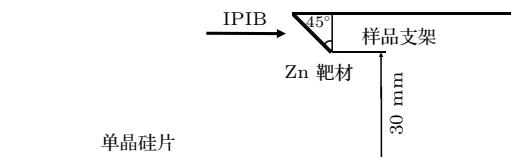


图2 烧蚀产物收集装置

Fig. 2. The ablation products collection platform.

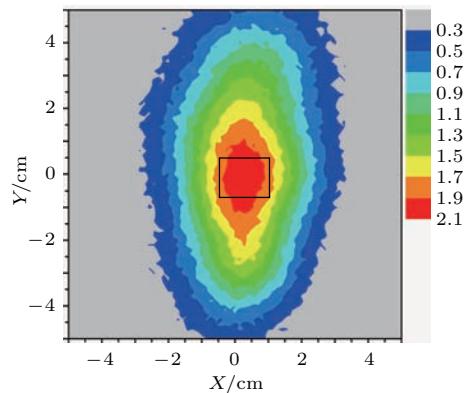


图3 (网刊彩色) 束流能量密度分布红外成像诊断结果 (J/cm²)

Fig. 3. (color online) Infrared diagnostic result of the energy density distribution (J/cm²).

3 结果与讨论

3.1 烧蚀产物分析

天平称量结果表明, Zn靶材在IPIB辐照10个脉冲后质量减少了485 μg, 说明Zn靶材表面发生烧蚀。而放置在Zn靶材下方的单晶Si片质量增加了76 μg, 可以说明Si片接收到部分烧蚀产物。IPIB辐照前后的Zn靶材表面SEM观测结果如图4所示, 从图4(b)中可以看到辐照10个脉冲后, Zn靶材表面出现明显起伏和熔化痕迹。

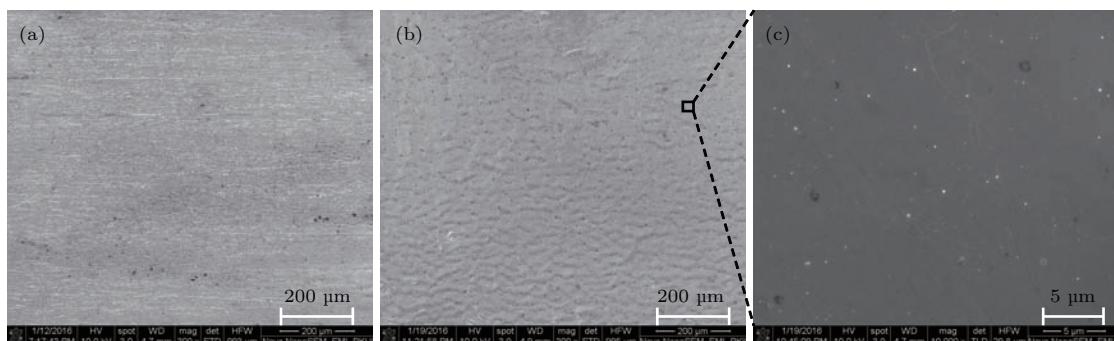


图4 Zn靶材表面形貌SEM图像 (a) 未辐照; (b), (c) IPIB辐照10个脉冲后

Fig. 4. SEM images of Zn surfaces: (a) Nonirradiated; (b), (c) after irradiation by 10 pulses IPIB.

图5为IPIB辐照Zn靶材前后单晶Si片的表面形貌和成分分析结果。辐照实验后的单晶Si片上的EDS分析结果显示各区域均有Zn元素，表明这些区域接收到了IPIB辐照Zn靶材过程中产生的烧蚀产物。在图5(d)中，单晶Si表面所标注的区域中SEM图没有观测到明显的烧蚀产物，但是EDS分析却表明该区域含有Zn元素成分。说明在IPIB辐照Zn过程中有气态的Zn产生，这些Zn气体飞落到Si片上，尺度极小，难以被现有观测手段观测到。

从图5(b)和图5(c)中可以看到辐照后单晶Si表面出现了大量近似圆形的Zn颗粒，直径从30 nm至2 μm大小不等。这些颗粒主要来源于Zn汽化后形成的等离子体羽流，以及气体反冲作用力作用于

靶材表面熔化为液态的Zn后而喷溅出的Zn小液滴。由于喷发时Zn的温度和所受作用力大小不同，这些颗粒到达单晶Si表面凝固后的颗粒大小和形状并不相同。

从图4(c)的Zn靶材表面形貌图中可以看到在IPIB辐照后Zn靶材表面也出现了和单晶Si基底上一样的近似圆形小颗粒。这是因为当Zn汽化并发生烧蚀后，由于气态的Zn原子运动方向的随机性，烧蚀产物是同时向各个方向喷发的，所以会有一部分Zn烧蚀产物回落到了靶材表面。这同时也说明了，Si片上接收到的烧蚀产物只是Zn靶材烧蚀产物的一部分。可以合理判断，单晶Si片质量的增加值要小于Zn靶材质量的损失值，因此实际质量损失远大于76 μg。

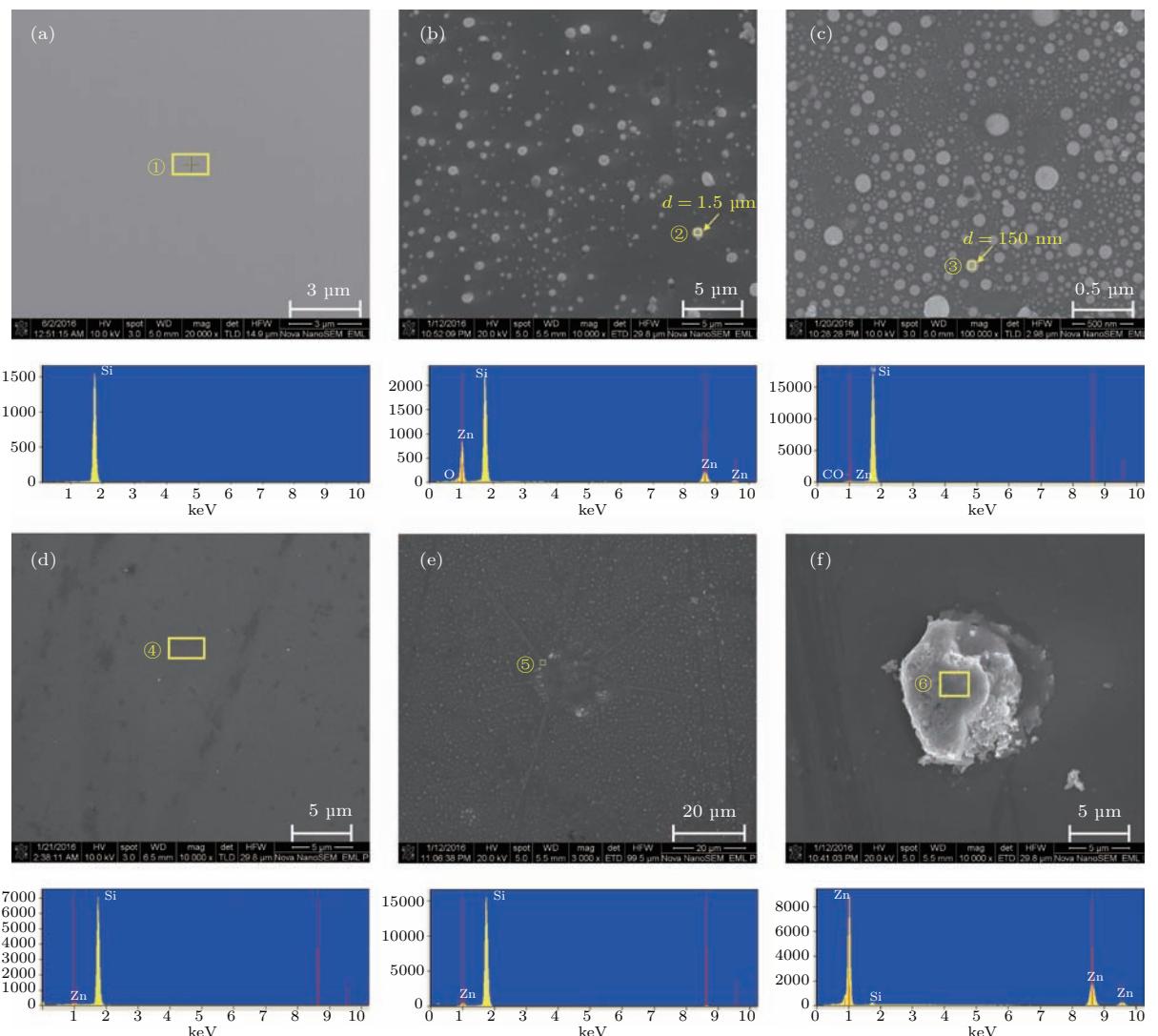


图5 Si片表面形貌SEM图像和EDS分析结果 (a) 辐照实验前的Si片；(b)–(f) IPIB辐照Zn靶材10个脉冲后Si片不同区域

Fig. 5. SEM images and EDS results of Si surfaces: (a) Si before Zn irradiation; (b) to (f) different areas in Si after Zn irradiation by 10 pulses IPIB.

单晶 Si 片上除了收集到了大量的圆形颗粒, 还观察到少量较大尺寸液态飞溅形态产物, 如图 5(e) 所示。其组成成分为 Zn, 故可认为是 Zn 液滴, 由于液滴尺寸较大, 在滴落到 Si 基底表面后所需的凝固时间比小颗粒要长。同时 Zn 液滴在到达 Si 表面时仍具有一定速度, 因此 Zn 液体在 Si 基底上进行一段时间的流动后才发生凝固, 从而形成如图所示形状。

图 5(f) 中的烧蚀产物颗粒具有 $10 \mu\text{m}$ 尺度, 且边缘具有不规则形状, 可认为是固态 Zn 撞落在硅片上。圆润边缘显示其表面也可能出现熔融, 其来源可能是烧蚀过程携带固态靶材喷出; 也可能是在多个脉冲作用的过程中, Zn 靶材不断经历快速温度上升与下降过程, 最终在热应力作用下发生了固体形式的脱离现象^[13]。

表 1 为图 5 中各标记区域元素原子数量百分比。鉴于入射电子束(30 keV)具有一定入射深度(约 $10 \mu\text{m}$), 因此 EDS 能谱反映的是该深度范围内的元素成分比例。对于厚度较小的颗粒, 其元素成分比例会因基底中 Si 元素的影响而降低, 所以 Zn 元素的成分比例可以表征 Zn 颗粒的厚度。从表 1 中可以看到, 随着烧蚀颗粒直径的增大 Zn 元素比例增大, 这说明在烧蚀颗粒较大的区域 Zn 烧蚀产物的厚度也相对较大。

表 1 单晶 Si 片上标记的各区域的 Zn 和 Si 原子数百分比

Table 1. The percentage of Zn and Si atoms in each marked region of Si.

元素	位置 1	位置 2	位置 3	位置 4	位置 5	位置 6
Zn	0	26.08%	1.90%	0.99%	4.16%	93.34%
Si	100%	73.92%	98.10%	99.01%	95.84%	4.66%

3.2 热场与温度场分布

IPIB 辐照材料后, 沉积的束流能量将转化为热能从而使材料温度迅速升高, 剧烈的热效应将引发一系列材料的变化。相较于离子溅射镀膜技术中的离子, IPIB 的离子能量较高, 且每个脉冲的离子总数较少, 所以在 IPIB 辐照材料过程中离子溅射数量较少。根据本实验中的 IPIB 束流参数, 使用蒙特卡罗计算软件 SRIM 进行模拟计算, 可以计算出每个脉冲由于离子溅射脱离靶材的 Zn 的质量约为 $0.03 \mu\text{g}$, 与每个脉冲的烧蚀质量($\sim 50 \mu\text{g}$)相比可以忽略不计。因此, 以下将通过计算 IPIB 在材料中

引发的热场分布及演化, 对 IPIB 与材料的相互作用过程进行分析。

通过求解(1)式中的傅里叶热传导方程可以获得材料被 IPIB 辐照后的温度场分布。

$$\rho(T)C(T)\frac{\partial T}{\partial t} = k(T)\Delta T + Q, \quad (1)$$

其中 $\rho(T)$, $C(T)$ 和 $k(T)$ 分别为材料的密度、比热容和热导率。 Q 为热源, 也就是 IPIB 沉积能量的功率密度函数 P 。因为在 μs 量级时间内靶材内部的横向热传导效应远小于沿靶材深度方向的热传导效应, 所以本文中采用一维热传导模型来对材料内温度场的演化进行计算。因此 IPIB 沉积能量的功率密度可写为 IPIB 束流沉积能量在时间和深度上分布的函数, 即

$$P = P(x, t) = E \cdot d(x)n(t), \quad (2)$$

其中 E 为束流能量密度; $n(t)$ 为离子沉积能量随时间分布; $d(x)$ 为离子沉积能量随材料深度变化分布, 可由 SRIM 计算得到。 1.2 J/cm^2 的 IPIB 沉积在 Zn 靶材上的功率密度分布如图 6 所示。一维傅里叶热传导方程使用有限元计算软件 COMSOL Multiphysics 进行求解。

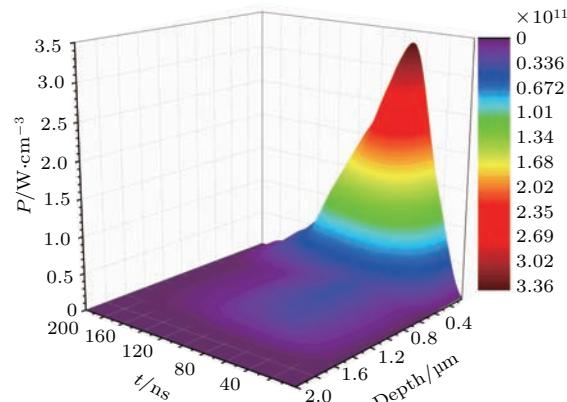


图 6 (网刊彩色) 1.2 J/cm^2 的 IPIB 沉积在 Zn 靶材上的功率密度分布

Fig. 6. (color online) Power density distribution of 1.2 J/cm^2 IPIB in Zn.

图 7 为 Zn 靶材被束流能量密度为 1.2 J/cm^2 的 IPIB 辐照后温度场随时间和空间演化的计算结果。由计算结果可以看到当 IPIB 辐照 Zn 表面后, Zn 表层温度迅速上升。随着 IPIB 沉积能量功率密度的增加, Zn 表面区域温度到达熔点(693 K)开始发生熔化, 之后温度到达沸点(1180 K)开始发生汽化, 深度方向临近区域也随之温度升高甚至熔融或汽化。因此, 在 $1.2\text{--}1.5 \text{ J/cm}^2$ 的 IPIB 辐照

Zn 靶材的过程中, 由于束流横向分布特征, 以及沿靶材深度方向的温度差异, Zn 靶材中可以形成气、液、固三种不同状态的 Zn 共同存在的情况。这也是在 IPIB 辐照 Zn 靶材烧蚀过程中, 会有气、液、固三种状态烧蚀产物的原因。

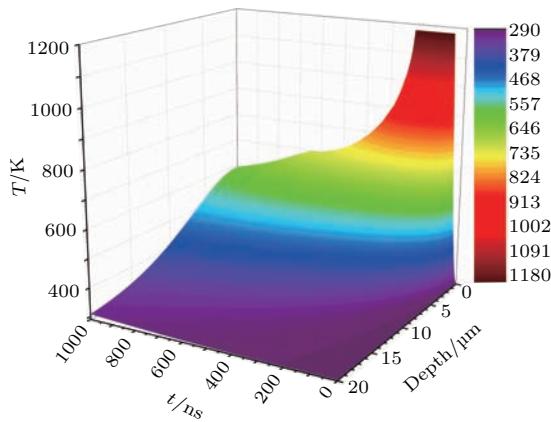


图 7 (网刊彩色) 1.2 J/cm² 的 IPIB 辐照后 Zn 的温度场分布

Fig. 7. (color online) Temperature field in Zn irradiated by a 1.2 J/cm² IPIB.

4 结 论

为了研究 IPIB 的烧蚀过程和烧蚀产物特性, 使用单晶 Si 片收集 IPIB 辐照 Zn 的烧蚀产物。结合实验结果和模拟计算结果, 得到以下结论:

1) 1.2—1.5 J/cm² 的 IPIB 辐照 Zn 的过程中 Zn 会由固态变为液态和气态, 发生烧蚀; 2) Zn 烧蚀过程中会产生气、液、固三种不同状态的烧蚀产物; 3) 单晶 Si 片上观察到的 Zn 烧蚀产物以直径为 0.03—2.00 μm 大小不等的近圆形颗粒为主, 同时还有少量 5 μm 以上形状不规则的大液滴和固体碎片; 4) 烧蚀产物厚度随烧蚀产物直径增大而增大。

感谢俄罗斯托木斯克理工大学高技术研究所第一实验室的 G. E. Remnev 教授和博士生 S. K. Pavlov 对于本工作中辐照实验的大力支持。

参考文献

- [1] Humphries J S 1980 *Nucl. Fusion* **20** 1549
- [2] Rej D J, Davis H A, Olson J C, Remnev G E, Zatkoutaev A N, Ryzhkov V A, Struts V K, Isakov I F, Shulov V A, Nochevnaya N A, Stinnett R W, Neau E L, Yatsui K, Jiang W 1997 *J. Vac. Sci. Technol. A* **15** 1089
- [3] Remnev G E, Isakov I F, Opeckounov M S, Matvienko V M, Ryzhkov V A, Strutsa V K, Grushina I I, Zatkoutayeva A N, Potyomkina A V, Tarbokova V A, Pushkaryova A N, Kutuzov V L, Ovsyannikov M Y 1999 *Surf. Coat. Technol.* **114** 206
- [4] Zhao W J, Remnev G E, Yan S, Opeckounov M S, Le X Y, Matvienko V M, Han B X, Xue J M, Wang Y G 2000 *Rev. Sci. Instrum.* **71** 1045
- [5] Piekoszewski J, Werner Z, Szymczyk W 2001 *Vacuum* **63** 475
- [6] Yatsui K, Grigoriu C, Masugata K, Jiang W, Sonegawa T 1997 *Jpn. J. Appl. Phys.* **36** 4928
- [7] Davis H A, Johnston G P, Olson J C, Rej D, Waganaar W J, Ruiz C L, Schmidlapp F A, Thompson M O 1999 *J. Appl. Phys.* **85** 713
- [8] Mei X X, Xu J, Ma T C 2002 *Acta Phys. Sin.* **51** 1875 (in Chinese) [梅显秀, 徐军, 马腾才 2002 物理学报 **51** 1875]
- [9] Pushkarev A I, Isakova Y I, Vakhrushev D V 2010 *Phys. Plasmas* **17** 123112
- [10] Isakova Y I 2011 *IEEE Pulsed Power Conference America, Chicago, June 19–23, 2011* p334
- [11] Isakova Y I, Pushkarev A I 2013 *Instrum. Exp. Tech.* **56** 185
- [12] Yu X, Shen J, Zhong H W, Qu M, Zhang J, Zhang G L, Zhang X F, Yan S, Le X Y 2015 *Acta Phys. Sin.* **64** 175204 (in Chinese) [喻晓, 沈杰, 钟昊玟, 屈苗, 张洁, 张高龙, 张小富, 颜莎, 乐小云 2015 物理学报 **64** 175204]
- [13] Shen J, Yu X, Zhang Y Y, Zhong H W, Zhang J, Qu M, Yan S, Zhang G L, Zhang X F, Le X Y 2015 *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. B* **365** 26

Characteristics of metal ablation product by intense pulsed ion beam irradiation*

Zhang Jie¹⁾²⁾ Zhong Hao-Wen¹⁾²⁾ Shen Jie¹⁾²⁾ Liang Guo-Ying¹⁾²⁾ Cui Xiao-Jun¹⁾²⁾
Zhang Xiao-Fu¹⁾²⁾ Zhang Gao-Long¹⁾²⁾ Yan Sha³⁾ Yu Xiao¹⁾²⁾ Le Xiao-Yun¹⁾²⁾†

1) (School of Physics and Nuclear Energy Engineering, Beihang University, Beijing 100191, China)

2) (Beijing Key Laboratory of Advanced Nuclear Energy Materials and Physics, Beihang University, Beijing 100191, China)

3) (Institute of Heavy Ion Physics, Peking University, Beijing 100871, China)

(Received 26 October 2016; revised manuscript received 1 December 2016)

Abstract

Intense pulse ion beam (IPIB) has been extensively used in material surface modification. The ablation effect plays an important role in the interaction between IPIB and material. Therefore, the understanding of ablation mechanism is of great significance for IPIB application. Here, to investigate the ablation process and the characteristics of ablation products, pure zinc targets are bombarded by IPIB of 1.2–1.5 J/cm² energy density at TEMP-4M accelerator. The ablation products are collected by monocrystalline silicon substrates in the IPIB irradiation process. By using the scanning electron microscopy, energy dispersive spectrometer and high precision balance, the surface morphology of the substrate and the characteristics of ablation products are obtained. The majority of observed ablation products are nearly circular particles with diameters of 0.03–2.00 μm. There are a small number of zinc droplets and solid debris with large irregular shapes on the silicon substrate. Combining Monte Carlo method and infrared imaging diagnostic results, a heat conduction model is constructed by finite element method to describe the distribution and evolution of thermal field formed by IPIB on a zinc target. The results show that the zinc target can be melted and evaporated under a 1.2 J/cm² IPIB irradiation. By comparing the experimental results with the simulation results, it is found that the gaseous, liquid and solid ablation products are generated collectively in the zinc ablation process. The causes of the different ablation products are also studied.

Keywords: intense pulse ion beam, ablation, ablation products, interaction

PACS: 52.59.-f, 68.55.-a, 79.20.Rf

DOI: 10.7498/aps.66.055202

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11175012) and the National Science and Technology Major Project of the Ministry of Science and Technology of China (Grant No. 2013GB109004).

† Corresponding author. E-mail: xyle@buaa.edu.cn