

УДК 537.534:538.911

## ВЛИЯНИЕ РАЗМЕРА ЗЕРНА И ТЕКСТУРЫ ПОЛИКРИСТАЛЛИЧЕСКОГО ВОЛЬФРАМА НА ЕГО ИОННО-ЛУЧЕВОЕ РАСПЫЛЕНИЕ

© 2025 г. Р. Х. Хисамов<sup>a,\*</sup>, Н. Н. Андрианова<sup>b,c</sup>, А. М. Борисов<sup>a,b,c</sup>,  
М. А. Овчинников<sup>b</sup>, Р. Р. Мулюков<sup>a</sup>

<sup>a</sup>Институт проблем сверхпластичности металлов РАН, Уфа, 450001 Россия

<sup>b</sup>Научно-исследовательский институт ядерной физики им. Д.В. Скобельцына Московского государственного университета им. М.В. Ломоносова, Москва, 119991 Россия

<sup>b</sup>Московский авиационный институт (Национальный исследовательский университет),  
Москва, 125993 Россия

\*e-mail: r.khisamov@mail.ru

Поступила в редакцию 11.10.2024 г.

После доработки 25.11.2024 г.

Принята к публикации 25.11.2024 г.

Исследовано влияние размера зерен и текстуры поликристаллического вольфрама на коэффициент распыления и морфологию поверхности при высокодозном облучении ионами  $Ag^+$  с энергией 30 кэВ. В эксперименте использовали образцы со средним размером зерен от 300 нм до 7 мкм, бестекстурные и с текстурой [001]. Показано, что ионно-индуцированная морфология поверхности сильно зависит от размера зерен и флуенса облучения. Размер зерен слабо (менее 10%) влияет на коэффициент распыления, в то время как текстура может двукратно снизить коэффициент распыления. Эксперимент с варьированием угла падения ионного пучка показал, что причиной двукратного снижения коэффициента распыления для текстурированных образцов является эффект каналирования. Проведен анализ влияния рельефа поверхности на коэффициент распыления. Предложено выражение, учитывающее перепыление атомов и отражение ионов, для прогнозирования коэффициента распыления поверхности с ионно-индуцированным рельефом.

**Ключевые слова:** вольфрам, интенсивная пластическая деформация, кручение под высоким давлением, ультрамелкозернистая структура, текстура, ионное облучение,  $Ag^+$ , конусы, коэффициент распыления, моделирование, перепыление, каналирование.

**DOI:** 10.31857/S1028096025020118, **EDN:** EHTNSY

### ВВЕДЕНИЕ

Вольфрам благодаря сочетанию свойств — высокой температуре плавления, коэффициенту теплопроводности, низкому коэффициенту теплового расширения, коэффициенту распыления — является перспективным материалом для внутренних стенок термоядерного реактора. В условиях работы реактора вольфрамовые стенки будут подвергаться ионно-плазменному воздействию. В этом аспекте, как известно, вольфрам недостаточно стойкий к облучению ионами гелия: на его поверхности образуются структуры типа блистера, пуха, которые приводят к деградации [1–5]. Одним из решений для предотвращения

образования блистеров, пуха на поверхности может быть формирование ультрамелкозернистой структуры в вольфраме (размер зерен менее 1 мкм). Это связано с тем, что при уменьшении размера зерен увеличивается доля их границ, которые могут быть стоками для ионно-индуцированных дефектов при облучении ионами гелия. Поведение нано- и ультрамелкозернистой структуры вольфрама при воздействии на него ионами гелия обсуждали в [6–12].

Вместе с этим необходимо исследовать влияние ультрамелкозернистой структуры и на другие свойства, ответственные за взаимодействие ионов с вольфрамом. В частности, это касается коэффи-

циента распыления. Устоялось мнение, что при снижении размера зерен в металле коэффициент распыления увеличивается, как предполагают, вследствие увеличения доли границ зерен. Однако экспериментальные исследования, проведенные на различных металлах, показывают, что, несмотря на существенное уменьшение размера зерен, его влияние на коэффициент распыления слабое [13–17]. Тем не менее аналогичные исследования необходимо провести и для вольфрама с целью выявления влияния ультрамелкозернистой структуры на коэффициент распыления.

В настоящей работе исследовано влияние ультрамелкозернистой структуры вольфрама на морфологию поверхности и коэффициент распыления при высокодозном облучении ионами аргона с энергией 30 кэВ. Ультрамелкозернистую структуру образцов вольфрама без пор и химических загрязнений получили путем интенсивной пластической деформации. Также исследования проведены и на прокатанном листе вольфрама с целью оценки влияния текстуры на коэффициент распыления. Выбор листа для исследований обусловлен также и тем, что прокатанные листы, как кажется, наиболее практичны для использования в качестве внутренних стенок в термоядерном реакторе.

## ЭКСПЕРИМЕНТ И МЕТОДЫ ИССЛЕДОВАНИЯ

В качестве материала для исследований выбрали поликристаллический вольфрам марки ВА с химическим составом: W 99.931, Al 0.002, Fe 0.009, Ni 0.004, Ca 0.010, Si 0.004, Mo 0.040 мас. %. Исходным материалом был неотожженный лист вольфрама толщиной около 0.7 мм, который был получен из штабика с помощью прокатки. Известно, что интенсивная пластическая деформация вольфрама при температуре, близкой к комнатной, для получения ультрамелкозернистой структуры затруднена [18, 19]. Это связано с тем, что при комнатной температуре вольфрам относительно хрупкий (температура хрупко-вязкого перехода для вольфрама составляет 200–400°C [19–22]). Недавно в [23] путем интенсивной пластической деформации методом кручения под высоким давлением при комнатной температуре из образцов, вырезанных из листа вольфрама толщиной около 0.7 мм, удалось получить дисковые образцы с ультрамелкозернистой структурой диаметром до 8 мм и толщиной 0.3 мм. Для увеличения размера образцов в этой работе часть листа вольфрама переплавили с помощью аргоно-дуговой плавки. В результате двукратной переплавки получили слиток, который состоял

из кристаллических зерен размером до 1 мм. Из переплавленного слитка вырезали дисковые заготовки диаметром 10 мм и толщиной 1 мм. Перед интенсивной пластической деформацией заготовки механически шлифовали и промывали в ультразвуковой ванне в ацетоне для удаления загрязнений. Интенсивную пластическую деформацию осуществляли методом кручения под высоким давлением [24–26] при усилии гидравлического пресса около 50 т при комнатной температуре. Для деформации использовали наковальни с плоской рабочей поверхностью. Число полных оборотов кручения, при котором удалось получить дисковые образцы диаметром 10–12 мм и толщиной не более 1 мм, равно шести. Давление, приходящее на образец в процессе кручения под высоким давлением, достигало 5–6 ГПа.

Для сравнения использовали образцы с различной микроструктурой. С целью получения образцов с увеличенным размером зерен образцы подвергали отжигу при температуре 1500°C. Использовали исходные образцы, вырезанные из листа вольфрама, а также эти же образцы, отожженные при температуре 1400°C. Выбор температур 1400–1500°C обусловлен тем, что при таких температурах происходит рекристаллизация (температура рекристаллизации вольфрама около 1100–1400°C [27]). Отжиг проводили в течение 1 ч в вакууме при остаточном давлении не выше  $5 \times 10^{-3}$  Па. Скорость нагрева задавали равной 12 град/мин, охлаждение проводили вместе с печью до комнатной температуры.

Поверхность всех исследуемых образцов механически шлифовали на кругах SiC с понижением зернистости от 600 до 4000. Полировку поверхности проводили в растворе 1 мас. % NaOH+H<sub>2</sub>O при напряжении и токе 16.5 В и 1.1 А соответственно при комнатной температуре.

Микроструктуру образцов исследовали с помощью растрового электронного микроскопа (РЭМ) Tescan Mira 3LHM в режиме детектирования обратно рассеянных электронов. Микроструктуру исследовали на половине радиуса дисковых образцов. Размер и ориентацию зерен определяли методом дифракции (обратно) отраженных электронов с шагом сканирования от 40 нм до 1 мкм.

Образцы облучали на масс-монохроматоре НИИЯФ МГУ [28]. Пучок ионов Ag<sup>+</sup> с током  $I \approx 0.1$  мА и поперечным сечением  $S \approx 0.3$  см<sup>2</sup> с энергией 30 кэВ направляли по нормали на участок поверхности, находящийся на половине радиуса дискового образца диаметром 10–12 мм. Плотность потока ионов  $J$  составила:  $J \approx I/(qS) \approx 2 \times 10^{15}$  см<sup>-2</sup>·с<sup>-1</sup>, где  $q$  — заряд иона. Температуру

образца контролировали хромель-алюмелевой термопарой, спай которого укрепляли на облучаемой стороне вне зоны облучения. Флуенс  $\Phi = Jt$  ( $t$  — время облучения) однократного облучения составлял  $3 \times 10^{18} \text{ см}^{-2}$ . Температура образца при таком флуенсе облучения не превышала  $50^\circ\text{C}$ .

При измерении коэффициента распыления образцы многократно облучали до флуенса  $1.5 \times 10^{19} \text{ см}^{-2}$  с шагом  $3 \times 10^{18} \text{ см}^{-2}$ . Коэффициент распыления  $Y$  определили, измеряя массу образца  $\delta m$  до и после облучения и используя выражение:

$$Y = \frac{\delta m N_A q}{M I t}, \quad (1)$$

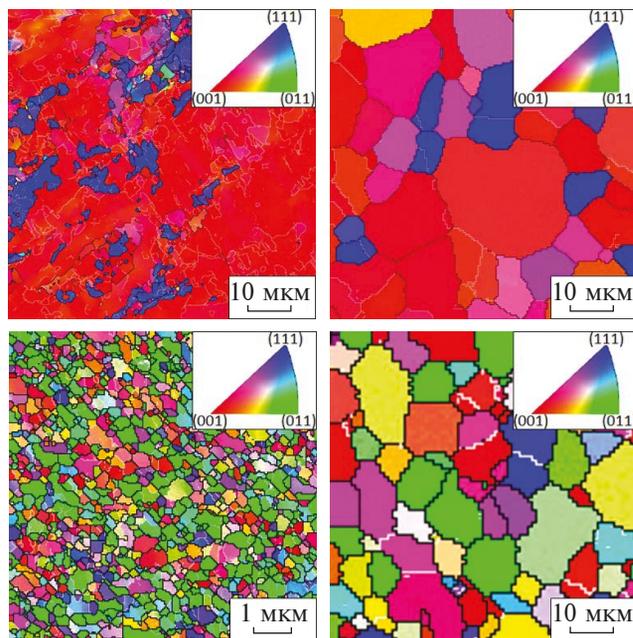
где  $N_A$  — число Авогадро,  $M$  — молярная масса мишени. Точность измерения составила 0.01 мг. Экспериментальные значения коэффициента распыления  $Y$  сопоставляли с расчетными, полученными с использованием программы SRIM-2013 [29].

Морфологию поверхности после облучения исследовали с помощью РЭМ в режиме детектирования вторичных электронов. Съемку проводили под углом  $45^\circ$  с коррекцией наклона вдоль плоскости образца. При таком режиме съемки масштаб (маркер) изображения одинаков как в горизонтальном, так и вертикальном направлениях.

## РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТА И ОБСУЖДЕНИЕ

Исследования с помощью РЭМ в режиме дифракции отраженных электронов показали, что в плоскости листа вольфрам имеет мелкозернистую структуру со средним размером зерен 1.7 мкм с преимущественной кристаллографической ориентацией [001] (рис. 1а, табл. 1). Отжиг мелкозернистого образца при  $1400^\circ\text{C}$  в течение 1 ч привел к росту размера зерен от 1 до 20 мкм при среднем размере 5 мкм. В его структуре появились зерна с другими ориентациями (рис. 1б). Судя по изображениям прямых полюсных фигур (табл. 1), текстура образцов хотя и изменилась, но не существенно.

Интенсивная пластическая деформация переплавленных заготовок с размером зерен до 1 мм методом кручения под высоким давлением при 6 ГПа привела к формированию в них поликристаллической ультрамелкозернистой структуры с размером зерен от 40 нм до 1 мкм при среднем значении 300 нм (рис. 1в). Механизм формирования ультрамелкозернистой структуры при интенсивной пластической деформации обсуждали, например, в [30]. Отжиг таких образцов



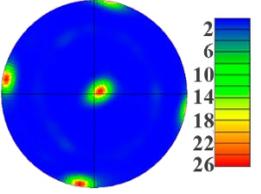
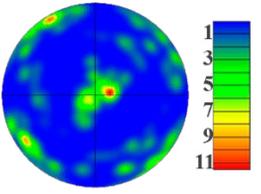
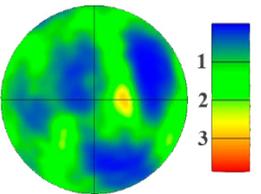
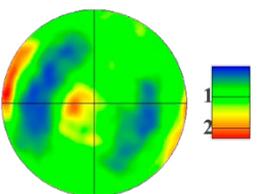
**Рис. 1.** РЭМ-изображения, полученные в режиме дифракции отраженных электронов, мелкозернистых (лист) (а, б) и ультрамелкозернистых (кручение под высоким давлением) (в, г) образцов вольфрама исходных (а, в) и после отжига при  $1400^\circ\text{C}$  (б) и  $1500^\circ\text{C}$  (г).

при  $1500^\circ\text{C}$  в течение 1 ч привел к росту зерен от 1 до 25 мкм при среднем значении 7 мкм (рис. 1д). Зерна в структуре как исходных, так и отожженных ультрамелкозернистых образцов не имели преимущественной ориентации (табл. 1), образцы были бестектурными.

Изменение размера зерен в образцах проявляется также в измерениях микротвердости. Так, микротвердость ультрамелкозернистых образцов, измеренная методом Виккерса, составила около 940 HV (табл. 1). После отжига микротвердость двукратно уменьшилась до 430 HV [23]. Согласно выражению Холла–Петча увеличение/уменьшение микротвердости в чистом металле может быть связано с уменьшением/увеличением размера зерна, что и наблюдается в случае исходных и отожженных ультрамелкозернистых образцов.

На рис. 2 представлены РЭМ-изображения поверхности образцов с различной микроструктурой после облучения ионами  $\text{Ag}^+$  с энергией 30 кэВ с флуенсом  $9 \times 10^{18} \text{ см}^{-2}$ . Облучение мелкозернистого (лист) образца привело к развитию рельефа с перепадом высот между зернами порядка 1 мкм (рис. 2а). На зернах наблюдались ямки травления, на наклонных поверхностях — террасы. На наиболее протравленных зернах обнаружены скопления ионно-индуцированных конусов.

Таблица 1. Микроструктура исследуемых образцов вольфрама

Образец	Распределение зерен по размеру, мкм	Средний размер зерен, мкм	Прямые полюсные фигуры для оси {001}	Микротвердость, НВ при $P = 100\text{--}300$ г
МЗ (лист)	0.2–7	1.7		$\approx 580$
МЗ (лист) + отжиг при 1400°C, 1 ч	1–20	5		$\approx 430$
УМЗ (КВД)	0.04–1	0.3		$\approx 940$
УМЗ (КВД) + отжиг при 1500°C, 1 ч	1–25	7		$\approx 430$

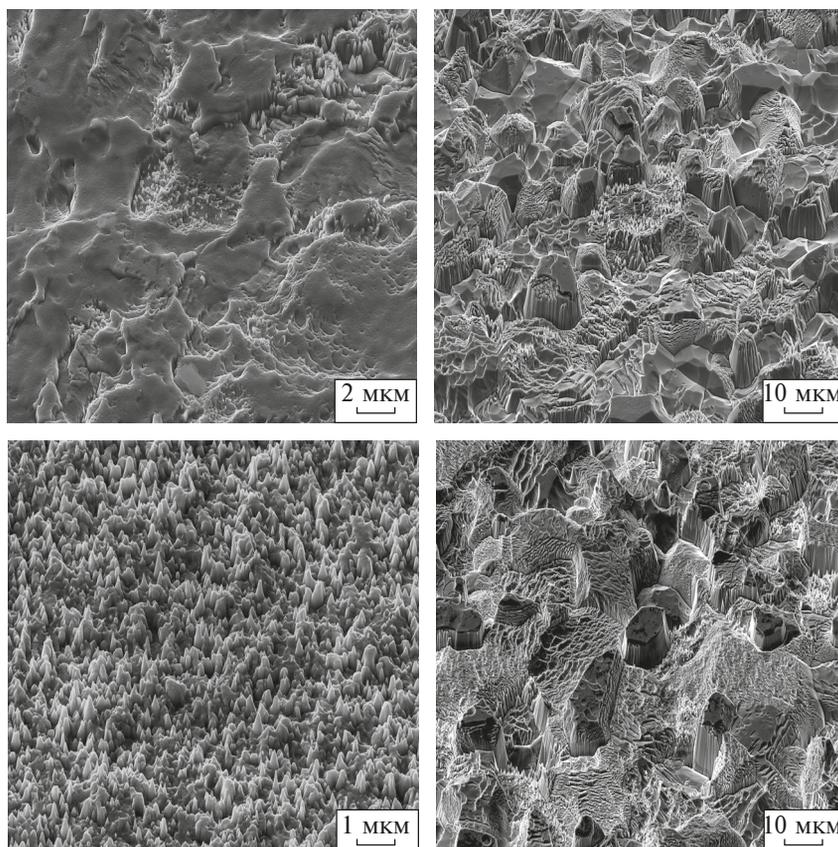
Примечание. МЗ — мелкозернистый, УМЗ — ультрамелкозернистый, КВД — кручение под высоким давлением.

В результате облучения ультрамелкозернистого образца флуенсом  $3 \times 10^{18} \text{ см}^{-2}$  на поверхности образуется конусообразный рельеф [23]. Коническими элементами рельефа являются заостренные при вершине зерна и ионно-индуцированные конусы. Высота конических элементов составляет около сотен нанометров, концентрация  $\sim 10^9 \text{ см}^{-2}$ , что сопоставимо с размером зерен и концентрацией зерен на поверхности. Последующее облучение флуенсом  $9 \times 10^{18} \text{ см}^{-2}$  (рис. 2в) не приводит к существенным изменениям рельефа. Морфология рельефа, размеры и концентрация конических элементов остаются теми же.

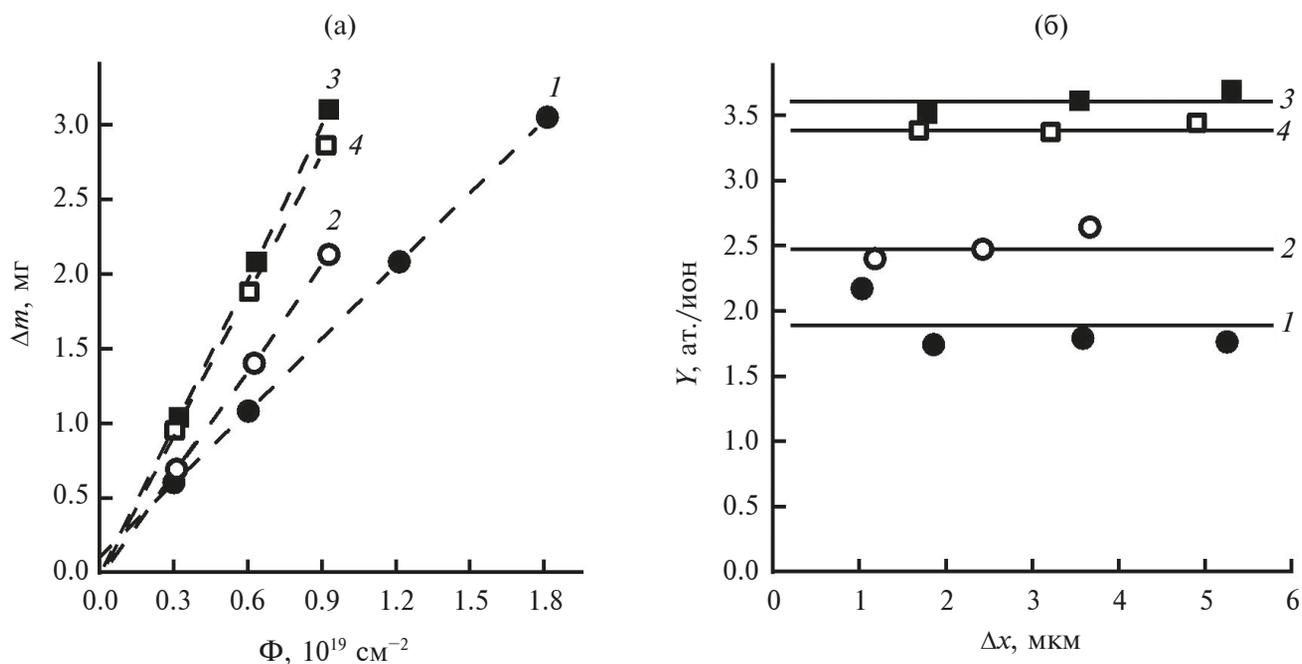
После облучения отожженных мелкозернистых (рис. 2б) и ультрамелкозернистых (рис. 2г) образцов со средними размерами зерен 5 и 7 мкм соответственно на их поверхности развивается рельеф с перепадом высот между зернами, сопоставимым с размером зерен. На поверхности зерен наблюдаются ямки травления, террасы и немногочисленные конусы. Есть также зерна

с относительно гладкой поверхностью. В целом можно заключить, что на ультрамелкозернистом образце уже при флуенсе облучения  $3 \times 10^{18} \text{ см}^{-2}$  образуется квазистационарный рельеф, в то время как рельеф мелкозернистого и отожженных ультрамелкозернистого и мелкозернистого образцах не квазистационарный даже при флуенсе облучения  $\sim 10^{19} \text{ см}^{-2}$ .

Эксперименты с измерением коэффициента распыления  $Y$  проводили следующим образом: вначале образцы с полированной поверхностью облучали флуенсом  $3 \times 10^{18} \text{ см}^{-2}$ , фиксировали изменение массы  $\delta m$ . При таком флуенсе облучения на поверхности образцов уже формировался некоторый рельеф в зависимости от микроструктуры, как показано на рис. 2. Затем эти же образцы с развитым рельефом на поверхности снова облучали по несколько разкратно флуенсу  $3 \times 10^{18} \text{ см}^{-2}$ . Измерения массы (рис. 3а) показали, что значение  $\delta m$  в последовательных циклах облучения практически одно и то же для всех



**Рис. 2.** РЭМ-изображения поверхности мелкозернистых (лист) (а, б) и ультрамелкозернистых (кручение под высоким давлением) (в, г) образцов вольфрама исходных (а, в) и после отжига при 1400 (б) и 1500°C (г), после облучения ионами  $\text{Ag}^+$  с энергией 30 кэВ, флуенс  $9 \times 10^{18} \text{ см}^{-2}$ . Угол съемки 45°.



**Рис. 3.** Зависимости изменения массы  $\Delta m$  от флуенса облучения  $\Phi$  (а) и коэффициента распыления  $Y$  от толщины распыленного слоя  $\Delta x$  (б) мелкозернистых (лист) (1, 2) и ультрамелкозернистых (кручение под высоким давлением) (3, 4) образцов вольфрама исходных (1, 3) и после отжига при 140 (2) и 1500°C (4), после облучения ионами  $\text{Ag}^+$  с энергией 30 кэВ. Нормальное падение ионов, температура мишени не выше 50°C.

образцов как при облучении изначально полированной поверхности, так и с последующим ионно-индуцированным рельефом. С увеличением флуенса суммарная потеря массы  $\Delta m$  увеличивалась линейно, где  $\Delta m = \delta m_1 + \delta m_2 + \dots + \delta m_n$  (рис. 3а). Линейная зависимость  $\Delta m$  от флуенса свидетельствует о постоянстве коэффициента распыления  $Y$ .

Из анализа экспериментальной зависимости  $\Delta m$  от флуенса можно выявить эффект увеличения или уменьшения коэффициента распыления  $Y$  поверхности с формирующимся ионно-индуцированным рельефом при облучении аналогично тому, как было сделано в [17]. Линейная аппроксимация экспериментальных точек показывает, что если прямая пересекает ось ординаты в отрицательной области, то это означает, что коэффициент  $Y$  гладкой поверхности меньше, чем коэффициент  $Y$  шероховатой с развитым ионно-индуцированным рельефом. Если же прямая пересекает ось ординат в положительной области, то очевидно, что коэффициент  $Y$  гладкой поверхности больше, чем коэффициент  $Y$  шероховатой. В этом случае можно говорить об ионно-индуцированном эффекте подавления распыления поверхности. И наконец, прохождение прямой через начало координат говорит о том, что коэффициенты  $Y$  гладкой и шероховатой поверхности совпадают. В рассматриваемом случае прямые для исходного и отожженного ультрамелкозернистых образцов практически проходят через начало координат (рис. 3а). Это означает, что, несмотря на большое различие исходно полированной поверхности и поверхности с ионно-индуцированным рельефом, коэффициенты распыления исходного и отожженного ультрамелкозернистых образцов (рис. 2) остаются одинаковыми.

Экспериментальные значения коэффициентов распыления  $Y$  для образцов с различной микроструктурой, рассчитанные с помощью выражения (1), представлены на рис. 3б. Можно видеть, что коэффициенты  $Y$  для бестекстурных исходных (средний размер зерен 300 нм) и отожженных ультрамелкозернистых образцов (7 мкм) близки. Средний коэффициент  $Y$  для неотожженного ультрамелкозернистого образца составил  $3.6 \pm 0.2$  ат./ион, для отожженного —  $3.4 \pm 0.1$  ат./ион. Для мелкозернистого (лист) образца с преимущественной ориентацией зерен [001] коэффициент  $Y$  составил  $1.9 \pm 0.4$  ат./ион. На рис. 3а можно заметить, что аппроксимирующая прямая для мелкозернистого образца пересекает ось ординаты в положительной области. Это означает, что

ионно-индуцированный рельеф на образце подавляет распыление. В случае отожженного мелкозернистого образца, на поверхности которого появились зерна с другими ориентациями, коэффициент  $Y$  увеличился и составил  $2.5 \pm 0.2$  ат./ион. Таким образом, коэффициент  $Y$  слабо зависит от размера зерен (менее 10%), флуенса облучения и толщины распыленного слоя, в то время как текстура вольфрама оказывает существенное влияние с почти двукратным уменьшением коэффициента  $Y$ .

В [16, 17] показано, что квазистационарный рельеф на поверхности металла образуется при флуенсах, когда толщина распыленного слоя сопоставима с размером зерен. В случае ультрамелкозернистого образца уже при флуенсе  $3 \times 10^{18}$  см<sup>-2</sup> толщина распыленного слоя составила более 1 мкм, что превышает максимальный размер зерна в образце (табл. 1). Соответственно, при флуенсе  $3 \times 10^{18}$  см<sup>-2</sup> на поверхности ультрамелкозернистого образца формируется квазистационарный рельеф, который не изменяется с увеличением флуенса. В других случаях, например, отожженного ультрамелкозернистого образца, в котором размер зерен достигает 25 мкм (табл. 1), флуенс  $10^{19}$  см<sup>-2</sup> с толщиной распыленного слоя около 5 мкм недостаточен для формирования квазистационарного рельефа. Можно предположить, что, увеличивая флуенс и, соответственно, толщину распыленного слоя, на мелкозернистом или крупнозернистом вольфраме можно достичь квазистационарного конусообразного рельефа, подобно тому, как это получилось в случае мелкозернистой меди в [16, 17].

При ионном облучении из-за эффекта нестабильности [31] практически всегда происходит распыление шероховатой поверхности, даже если изначально рельеф поверхности был гладкий [32–40]. Рельеф на поверхности может оказывать значительное влияние на коэффициент  $Y$  [41, 42] из-за широкого спектра локальных углов падения при ионной бомбардировке шероховатой поверхности. В [43] показано, что определяющим параметром процесса распыления может служить средний угол наклона элементов на поверхности, и этот параметр можно применять для различных спектров локальных углов.

Оценим влияние угла наклона элементов поверхности на коэффициент распыления  $Y$  на основе экспериментальных данных для ультрамелкозернистого образца. Выбор такого образца обусловлен тем, что, во-первых, он бестекстурный, во-вторых, его ионно-индуцированный рельеф поверхности квазистационарен при используемых в эксперименте флуенсах облучения и, как было выше описано, конусообразный.

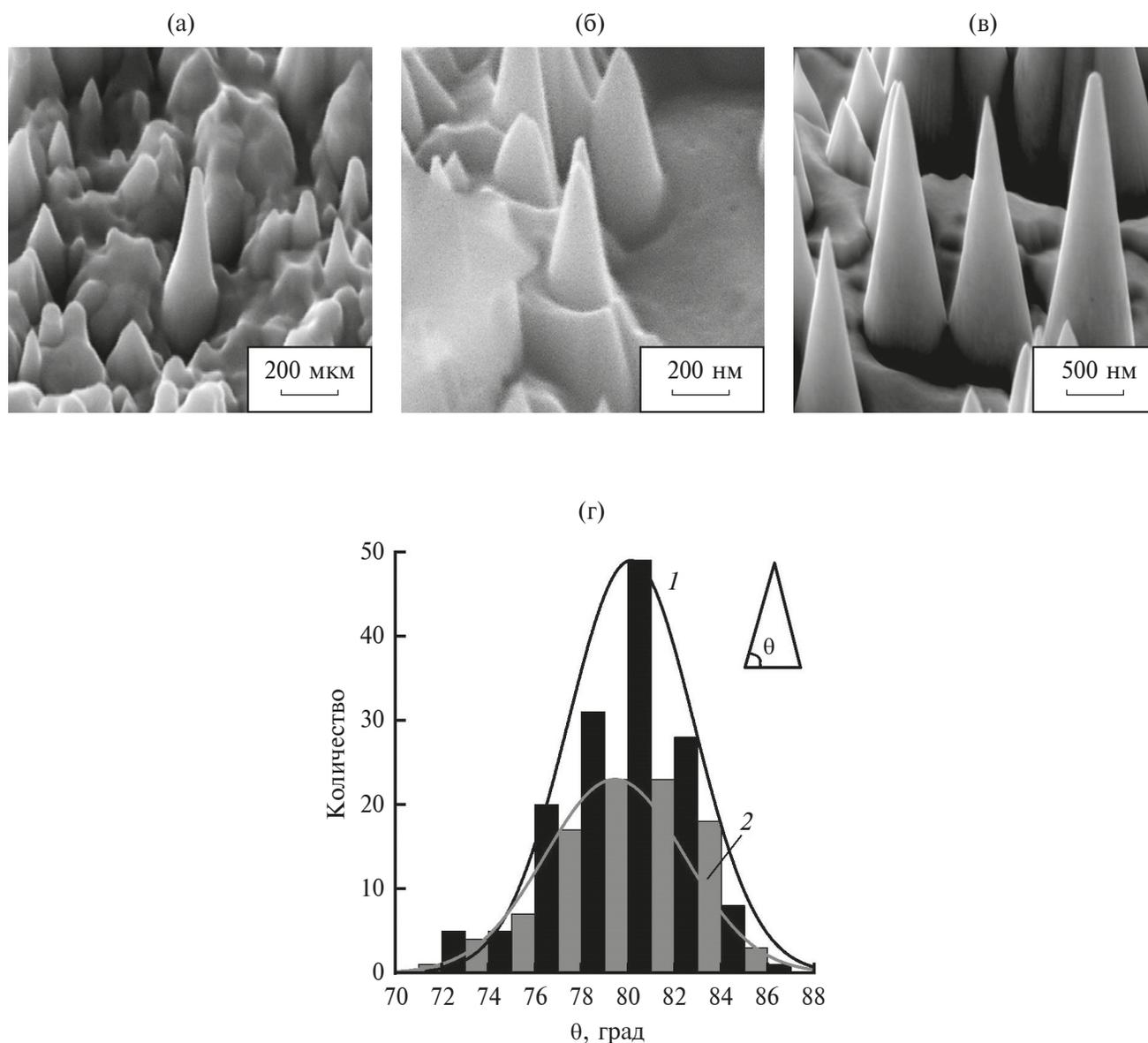
На рис. 4 представлены РЭМ-изображения конусов на поверхности образцов с различной микроструктурой. Углы наклона конических элементов измеряли по РЭМ-изображениям. Угол наклона конусов  $\theta$  независимо от размера зерна составил в среднем  $80^\circ$ . Близкие значения  $\theta$ , скорее всего, и стали причиной близких значений коэффициента распыления  $Y$  с разным размером зерен бестекстурных образцов.

В [44] предложено сложное интегральное выражение для коэффициента распыления  $Y$  шероховатой поверхности. Однако если рассматривать

поверхность покрытой только конусами с углом наклона  $\theta$ , то выражение для коэффициента  $Y_k(\theta)$  упрощается:

$$Y_k(\theta) = \frac{Y(\theta)[1 - F(\theta)]}{[1 - R(\theta)]}, \quad (2)$$

где  $Y(\theta)$  и  $R(\theta)$  — получаемые, например моделированием, угловые зависимости коэффициента распыления и отражения ионов соответственно для плоской поверхности,  $F(\theta)$  — доля перепыленных частиц со стенок конусов [16, 17]. Мно-



**Рис. 4.** Углы наклона конусов на поверхности ультрамелкозернистого (кручение под высоким давлением) (а) и мелкозернистого (лист) вольфрама (б), а также характерное РЭМ-изображение этих образцов после отжига при  $140$  и  $1500^\circ\text{C}$  (в) (угол съемки  $45^\circ$ ) соответственно при облучении ионами  $\text{Ag}^+$  с энергией  $30$  кэВ. Распределение углов наклона  $\theta$  для исходных ультрамелкозернистых (кручение под высоким давлением) (1) и отожженных при  $1500^\circ\text{C}$  (2) образцов вольфрама (г). На вставке — схематичное изображение конуса.

житель  $[1 - R(\theta)]$  учитывает, что при нормальном падении все ионы участвуют в распылении, включая и отраженные от стенок конусов [33, 37]. В расчетах  $Y_k(\theta)$  из семейства зависимостей  $F(\theta)$ , представленных в [45], использовали кривую для косинусоидального распределения распыленных атомов [16, 17].

Получить зависимости  $Y(\theta)$  и  $R(\theta)$  можно, например, с помощью программы SRIM-2013. Однако имеются некоторые трудности расчета этих зависимостей. Как известно, при моделировании коэффициентов распыления с помощью различных программ можно столкнуться с тем, что значения коэффициентов, выдаваемые программами, могут значительно отличаться от экспериментальных коэффициентов  $Y$ . Например, в эксперименте  $Ag^+ \rightarrow W$  (30 кэВ, нормальное падение ионов) коэффициент распыления  $Y$  для бестекстурного ультрамелкозернистого вольфрама составил  $3.6 \pm 0.2$  ат./ион, для отожженного образца —  $3.4 \pm 0.1$  ат./ион. Учитывая, что рельеф ультрамелкозернистого образца квазистационарный и он может соответствовать стационарному коэффициенту распыления (размер зерен практически не влияет на коэффициент  $Y$ ), примем для бестекстурного вольфрама коэффициент распыления, равный 3.6 ат./ион. В то же время по расчетам Экштайна [46] коэффициент  $Y$  равен 2.6 ат./ион, по формуле Ямамуры — 2.45 ат./ион [47], по расчетам группы Зиновьева для планарного поверхностного барьера — около 1.8 ат./ион [48]. Коэффициент  $Y$ , выдаваемый программой SRIM-2013 с той же поверхностной энергией связи атомов 8.68 эВ, составляет 4.2 ат./ион [29]. В [49] для расчета коэффициента распыления с помощью программы SRIM-2013 проводили подгонку значения энергии поверхностной связи атомов. Показано, что для согласия с экспериментом по облучению вольфрама ионами с энергией порядка кэВ в расчетах коэффициента  $Y$  с помощью программы SRIM-2013 нужно брать энергию связи атомов 14 эВ. При облучении ионами аргона с энергией 30 кэВ расчет при энергии связи 14 эВ дает коэффициент  $Y = 2.65$  ат./ион, что существенно меньше экспериментального значения 3.6 ат./ион. Хорошее согласие с экспериментом при распылении вольфрама ионами аргона с энергией 30 кэВ дает поверхностная энергия связи атомов 10.1 эВ, которую и использовали в дальнейшем при моделировании зависимостей  $Y(\theta)$  и  $R(\theta)$  с помощью программы SRIM-2013. Если ранее в [16, 17] значение  $R(\theta)$  брали как отношение числа обратно рассеянных ионов  $BS(\theta)$  ( $BS$  — backscattered ions) к числу падающих ионов  $N$ ,

т.е.,  $R(\theta) = BS(\theta)/N$ , то в данном расчете для коэффициента отражения ионов брали более корректную величину  $R(\theta) = (BS(\theta) - BS_0)/N$ , где  $BS_0$  — число обратно рассеянных ионов при нормальном падении ионов ( $\theta = 0^\circ$ ). Вычитание  $BS_0$  позволяет исключить в потоке малоуглового упругого отражения ионов при скользящей бомбардировке сильные упругие соударения ионов, приводящие к обратному рассеянию.

На рис. 5 представлены расчетные зависимости коэффициентов распыления  $Y(\theta)$  и  $Y_k(\theta)$  с учетом перепыления атомов и отражения ионов. Зависимость  $Y(\theta)$  соответствует случаю, когда поверхность представлена в виде одиночного конуса,  $Y_k(\theta)$  — конусообразному рельефу поверхности. Видно, что до углов наклона конусов  $\theta$  до  $20^\circ$  расчетные коэффициенты как для одиночного конуса  $Y$ , так и для конусообразного рельефа  $Y_k$  близки. Однако при увеличении угла  $\theta$  за счет увеличения коэффициента перепыления атомов коэффициент  $Y_k$  для конусообразного рельефа снижается и совпадает с экспериментальным значением  $Y = 3.6$  ат./ион. Так, при угле наклона конусов  $\theta = 79^\circ$ , что очень близко к измеренным углам (рис. 4), коэффициент конусообразного рельефа  $Y_k = 3.6$ , что близко к коэффициенту в случае гладкого рельефа ( $\theta = 0^\circ$ ).

Вообще говоря, коэффициент распыления  $Y$  шероховатой поверхности составляют коэффициенты  $Y$  отдельных морфологических элементов

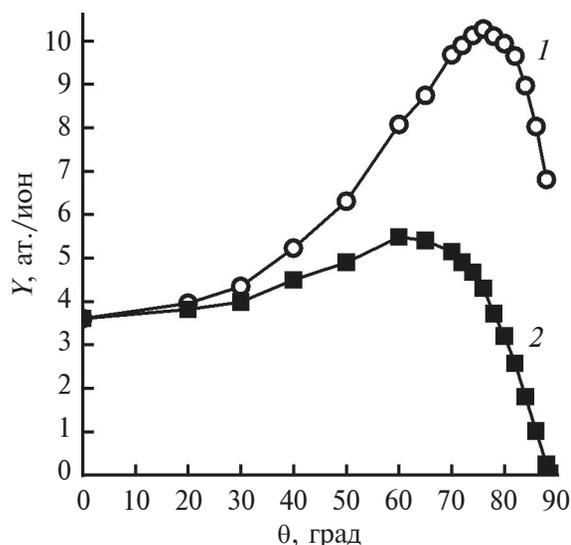


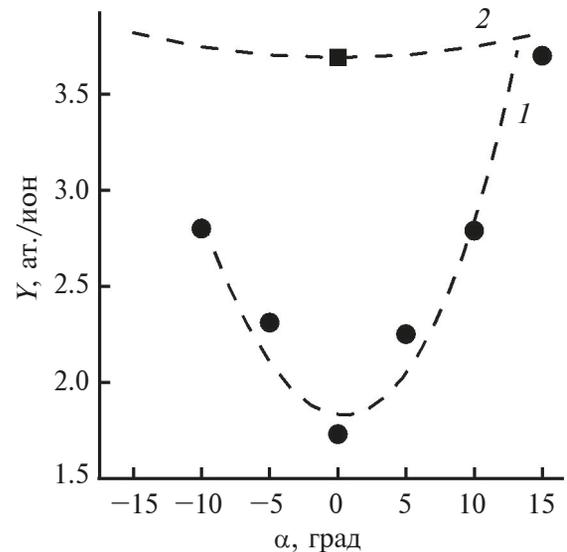
Рис. 5. Зависимость коэффициента  $Y$  от угла наклона  $\theta$  для одиночного конуса  $Y(\theta)$  (1) и конусообразного рельефа  $Y_k(\theta)$  (2) на поверхности вольфрама при облучении ионами  $Ag^+$  с энергией 30 кэВ при нормальном падении ионов.

поверхности с углом наклона  $\theta$  [36]. При длительном распылении удаляются элементы с большим коэффициентом распыления  $Y$  и формируется стационарный рельеф с одним и тем же минимальным коэффициентом  $Y$  всех оставшихся элементов [46, 50]. Можно предположить, что если стационарный рельеф содержит гладкие участки с углом наклона  $\theta = 0^\circ$ , то наклонным элементам поверхности при длительном распылении будет соответствовать угол падения  $\theta$ , при котором коэффициент  $Y$  будет совпадать с коэффициентом  $Y$  для гладкой поверхности. Элементы поверхности с другими углами наклона будут полностью распылены. Поведение расчетной кривой  $Y_k(\theta)$  и приведенные на рис. 2 примеры ионно-индуцированной топографии этому предположению не противоречат.

Расчетная кривая  $Y_k(\theta)$  из-за двузначности в широкой области углов наклона предполагает бимодальное распределение углов наклона, которое действительно часто наблюдается при высоких флуенсах облучения [34]. При больших углах наклона, когда  $Y_k < Y_k(0)$ , функция  $Y_k(\theta)$  становится однозначной и стремится к нулю при  $\theta = 90^\circ$ . Концепция минимальности распыления поверхности со стационарной долговременной морфологией не предполагает полное подавление распыления, поскольку включает еще и требование стационарной термодинамической минимизации общей поверхностной свободной энергии [50].

Что касается низкого значения коэффициента распыления  $Y$  для мелкозернистого (лист) образца, это связано с эффектом каналирования [51–53]. Отметим, что пространственные распределения распыленных атомов текстурированного вольфрама показывают типичные для распыления монокристаллов пятна Венеры [54]. На рис. 6. представлена зависимость коэффициента распыления  $Y$  от угла наклона мелкозернистого образца при ионном облучении. При нормальном падении  $\alpha = 0^\circ$  ионов  $Ag^+$  с энергией 30 кэВ коэффициент  $Y$  для такого образца с текстурой зерен [001] составил  $1.9 \pm 0.4$  ат./ион. С увеличением угла наклона коэффициент  $Y$  значительно возрос. При угле  $\alpha \approx 15^\circ$  коэффициент  $Y$  для мелкозернистого образца практически близок к коэффициенту  $Y$  бестекстурного ультрамелкозернистого образца 3.6 ат./ион.

Образовавшаяся “лунка” для коэффициента распыления характерна при каналировании ионов в монокристаллах. Ион каналирует вдоль цепочки атомов, пока он не отклонится на некоторый критический угол  $\psi_c$  (3) (например, [51]):



**Рис. 6.** Коэффициент распыления  $Y$  в зависимости от угла наклона для мелкозернистого (лист) образца вольфрама с текстурой зерен [001] при облучении ионами  $Ag^+$  с энергией 30 кэВ (1), а также ультрамелкозернистого (кручение под высоким давлением) образца (2).

$$\psi_c = \sqrt{\frac{Ca_{12}}{\sqrt{2}t_{uvw}} \left[ \frac{2Z_1Z_2e^2}{Et_{uvw}} \right]^{\frac{1}{4}}}, \quad (3)$$

где  $Z_1$  и  $Z_2$  — атомные номера первичного атома и атома-мишени,  $a_{12}$  — радиус экранирования для взаимодействия между атомами, описываемый потенциалом Томаса–Ферми или Фирсова, параметр  $C$  — постоянная, равная  $\sim\sqrt{3}$ ,  $e$  — заряд электрона,  $E$  — энергия иона,  $t_{uvw}$  — расстояние между атомами цепочки. Рассчитанный критический угол  $\psi_c$  для ориентации [001] составил  $8.8^\circ$  при расчете с учетом радиуса экранирования  $a_{12}$  по Томасу–Ферми и  $8.4^\circ$  по Фирсову. Экспериментальный критический угол, оцениваемый на полувысоте от максимального значения, составил близкое значение  $9^\circ$ .

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Основные результаты исследования распыления поликристаллического вольфрама ионами аргона с энергией 30 кэВ сводятся к следующему. Стационарный конусообразный рельеф на поверхности  $W$  образуется при флуенсах, достаточных для распыления слоя толщиной, сопоставимой со средним размером зерна. Экспериментально измеренный коэффициент распыления  $Y$  для  $W$  слабо зависит от размера зерен, флуенса, толщины распыленного слоя, ионно-индуцированного рельефа. Коэффициент  $Y$  бестекстурного ультрамелкозернистого  $W$  со-

ставил  $Y = 3.6 \pm 0.2$ , для ультрамелкозернистого W, отожженного при  $1500^\circ\text{C}$ ,  $Y = 3.4 \pm 0.1$ . Анализ линейной зависимости потери массы при распылении от флуенса  $\Delta m(\Phi)$  в виде  $Y = bx$  позволяет предположить, что  $Y = 3.4-3.6$  одинаков как для гладкой поверхности, так и для поверхности с ионно-индуцированным рельефом.

Наличие текстуры прокатки W приводит к двукратному уменьшению коэффициента мелкозернистого W  $Y = 1.9 \pm 0.4$ . Отжиг текстурированного W при  $1400^\circ\text{C}$  не устраняет сильное влияние текстуры на распыление ( $Y = 2.5 \pm 0.2$ ). Ориентационная зависимость  $Y$  показывает типичную для эффекта осевого [001] каналирования лунку, наблюдаемую при распылении монокристаллов.

### ФИНАНСИРОВАНИЕ РАБОТЫ

Работа А.М. Борисова поддержана РНФ (проект № 25-79-53009), работа Р.Х. Хисамова выполнена в рамках государственного задания Института проблем сверхпластичности металлов РАН. Работа Р.Р. Мулюкова поддержана Евразийским научно-образовательным центром Республики Башкортостан. Электронно-микроскопические исследования проведены на оборудовании ЦКП “Структурные и физико-механические исследования материалов” ИПСМ РАН.

### КОНФЛИКТ ИНТЕРЕСОВ

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Guseva M.I., Martynenko Yu.V. // Sov. Phys. Usp. 1981. V. 24. P. 996. <https://doi.org/10.1070/PU1981v024n12ABEH004758>
2. Martynenko Yu.V., Nagel M.Yu. // Plasma Phys. Rep. 2012. V. 38. P. 996. <https://doi.org/10.1134/S1063780X12110074>
3. Kajita S., Kawaguchi S., Ohno N., Yoshida N. // Sci. Rep. 2018. V. 8. P. 56. <https://doi.org/10.1038/s41598-017-18476-7>
4. Harutyunyan Z.R., Ogorodnikova O.V., Aksenova A.S., Gasparyan Yu.M., Efimov V.S., Kharkov M.M., Kaziev A.V., Volkov N.V. // J. Surf. Invest: X-Ray, Synchrotron Neutron Tech. 2020. V. 14. № 6. P. 1248. <https://doi.org/10.1134/S1027451020060245>
5. Budaev V.P., Fedorovich S.D., Dedov A.V., Karpov A.V., Martynenko Yu.V., Kavyrshin D.I., Gubkin M.K., Lukashevsky M.V., Lazukin A.V., Zakharenkov A.V., Sliva A.P., Marchenkov A.Yu., Budaeva M.V., Tran Q.V., Rogozin K.A., Konkov A.A., Vasilyev G.B., Burmistrov D.A., Belousov S.V. // Plasma Discharge. Fusion Sci. Technol. 2023. V. 79. Iss. 4. P. 404. <https://doi.org/10.1080/15361055.2022.2118471>
6. Efe M., El-Atwani O., Guo Y, Klenosky D.R. // Scr. Mater. 2014. V. 70. P. 31. <https://doi.org/10.1016/j.scriptamat.2013.08.013>
7. El-Atwani O., Hattar K., Hinks J.A., Greaves G., Harilal S.S., Hassanein A. // J. Nucl. Mater. 2015. V. 458. P. 216. <http://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2014.12.095>
8. Chen Z., Niu L-L., Wang Z., Tian L., Kecskes L, Zhu K., Wei Q. // Acta Mater. 2018. V. 147. P. 100. <https://doi.org/10.1016/j.actamat.2018.01.015>
9. Wu Y-C., Hou Q-Q., Luo L-M., Zan X., Zhu X-Y., Li P., Xu Q., Cheng J-G., Luo G-N., Chen J-L. // J. Alloys Compd. 2019. V. 779. P. 926. <https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2018.11.279>
10. El-Atwani O., Cunningham W.S., Perez D., Martinez E., Trelewicz J.R., Li M., Maloy S.A. // Scr. Mater. 2020. V. 180. P. 6. <https://doi.org/10.1016/j.scriptamat.2020.01.013>
11. Qian W., Wei R., Zhang M., Chen P., Wang L., Liu X., Chen J., Ni W., Zheng P. // Mater. Lett. 2022. V. 308. P. 130921. <https://doi.org/10.1016/j.matlet.2021.130921>
12. Wurmshuber M., Doppermann S., Wurster S., Jakob S., Balooch M., Alfreider M., Schmuck K., Bodlos R., Romaner L., Hosemann P., Clemens H., Maier-Kiener V., Kiener D. // Int. J. Refract. Met. Hard Mater. 2023. V. 111. P. 106125. <https://doi.org/10.1016/j.ijrmhm.2023.106125>
13. Michaluk C.A. // J. Electron. Mater. 2002. V. 31. P. 2. <https://doi.org/10.1007/s11664-002-0165-9>
14. Voitsenya V.S., Balden M., Bardamid A.F., Bondarenko V.N., Davis J.W., Konovalov V.G., Ryzhkov I.V., Skoryk O.O., Solodovchenko S.I., Zhang-jian Z. // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B. 2013. V. 302. P. 32. <https://doi.org/10.1016/j.nimb.2013.03.005>
15. Yang W., Zhao G., Wang Y., Wang S., Zhan S., Wang D., Bao M., Tang B., Yao L., Wang X. // J. Mater. Sci.: Mater. Electron. 2021. V. 32. P. 26181. <https://doi.org/10.1007/s10854-021-06645-4>
16. Andrianova N.N., Borisov A.M., Ovchinnikov M.A., Khisamov R.Kh., Mulyukov R.R. // J. Surf. Invest.: X-Ray, Synchrotron Neutron Tech. 2024. V. 18. P. 305. <https://doi.org/10.1134/S1027451024020046>
17. Andrianova N.N., Borisov A.M., Ovchinnikov M.A., Khisamov R.Kh., Mulyukov R.R. // Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. 2024. V. 88. P. 478. <https://doi.org/10.1134/S1062873823706141>
18. Mulyukov R.R. // J. Vac. Sci. Technol. B. 2006. V. 24. P. 1061. <https://doi.org/10.1116/1.2174024>
19. Zhang Y., Ganeev A.V., Wang J.T., Liu J.Q., Alexandrov I.V. // Mater. Sci. Eng. A. 2009. V. 503. P. 37. <https://doi.org/10.1016/j.msea.2008.07.074>
20. Németh A.A.N., Reiser J., Armstrong D.E.J., Rieth M. // Int. J. Refract. Met. Hard Mater. 2015. V. 50. P. 9. <https://doi.org/10.1016/j.ijrmhm.2014.11.005>
21. Bonnekoh C., Lied P., Pantleon W., Karcher T., Leiste H., Hoffmann A., Reiser J., Rieth M. // Int. J. Refract. Met. Hard Mater. 2020. V. 93. P. 105347. <https://doi.org/10.1016/j.ijrmhm.2020.105347>

22. *Oh Y., Ko W.-S., Kwak N., Jang J., Ohmura T., Han H.N.* // *J. Mater. Sci. Technol.* 2022. V. 105. P. 242.  
<https://doi.org/10.1016/j.jmst.2021.07.024>
23. *Khisamov R.Kh., Andrianova A.A., Borisov A.M., Ovchinnikov M.A., Timiryayev R.R., Musabirov I.I., Mulyukov R.R.* // *Phys. At. Nucl.* 2023. V. 86. № 10. P. 2198.  
<https://doi.org/10.1134/S1063778823100228>
24. *Markushev M.V., Avtokratova E.V., Krymskiy S.V., Tereshkin V.V., Sitdikov O.Sh.* // *Lett. Mater.* 2022. V. 12. Iss. 4s. P. 463.  
<https://doi.org/10.22226/2410-3535-2022-4-463-468>
25. *Yusupova N.R., Krylova K.A., Mulyukov R.R.* // *Lett. Mater.* 2023. V. 13. Iss. 3. P. 255.  
<https://doi.org/10.22226/2410-3535-2023-3-255-259>
26. *Mulyukov R.R., Khisamov R.Kh., Borisov A.M., Baimiev A.Kh., Ovchinnikov M.A., Timiryayev R.R., Vladimirova A.A.* // *Lett. Mater.* 2023. V. 13. Iss. 4. P. 373.  
<https://doi.org/10.22226/2410-3535-2023-4-373-376>
27. *Xue K., Guo Y., Zhou Y., Xu B., Li P.* // *Int. J. Refr. Met. Hard Mater.* 2021. V. 94. P. 105377.  
<https://doi.org/10.1016/j.ijrmhm.2020.105377>
28. *Mashkova E.S., Molchanov V.A.* *Medium-Energy Ion Reflection from Solids.* Amsterdam: North-Holland, 1985. 444 p.
29. *Ziegler J.F., Biersack J.P.* SRIM, 2013. <http://www.srim.org>
30. *Sun M., Ding C., Xu J., Shan D., Guo B., Langdon T.G.* // *Crystals.* 2023. V. 13. P. 887.  
<https://doi.org/10.3390/cryst13060887>
31. *Bradley R.M., Harper J.M.E.* // *J. Vac. Sci. Technol. A.* 1988. V. 6. P. 2390.  
<https://doi.org/10.1116/1.575561>
32. *Chan W.L., Chason E.* // *J. Appl. Phys.* 2007. V. 101. P. 121301.  
<https://doi.org/10.1063/1.2749198>
33. *Littmark U., Hofer W.O.* // *J. Mater. Sci.* 1978. V. 13. P. 2577.  
<https://doi.org/10.1007/BF00552687>
34. *Kustner M., Eckstein W., Dose V., Roth J.* // *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B.* 1998. V. 145. P. 320.  
[https://doi.org/10.1016/S0168-583X\(98\)00399-1](https://doi.org/10.1016/S0168-583X(98)00399-1)
35. *Makeev M.A., Barabasi A.-L.* // *Nucl. Instrum. Methods Physics. Res. B.* 2004. V. 222. P. 316.  
<https://doi.org/10.1016/j.nimb.2004.02.027>
36. *Stadlmayr R., Szabo P.S., Berger B.M., Cupak C., Chiba R., Blöch D., Mayer D., Stechauner B., Sauer M., Foelske-Schmitz A., Oberkofler M., Schwarz-Selinger T., Mutzke A., Aumayr F.* // *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B.* 2018. V. 430. P. 42.  
<https://doi.org/10.1016/j.nimb.2018.06.004>
37. *Shulga V.I.* // *J. Surf. Invest.: X-Ray, Synchrotron Neutron Tech.* 2020. V. 14. P. 1346.  
<https://doi.org/10.1134/S1027451020060440>
38. *Borisov A.M., Mashkova E.S., Ovchinnikov M.A., Khisamov R.K., Mulyukov R.R.* // *J. Surf. Invest.: X-Ray, Synchrotron Neutron Tech.* 2021. V. 15. P. S66.  
<https://doi.org/10.31857/S1028096022030062>
39. *Borisov A.M., Mashkova E.S., Ovchinnikov M.A., Khisamov R.K., Mulyukov R.R.* // *Tech. Phys. Lett.* 2022. V. 48. Iss. 6. P. 55.  
<https://doi.org/10.21883/TPL.2022.06.53792.19146>
40. *Bradley R.M., Hobler G.* // *J. Appl. Phys.* 2023. V. 133. P. 065303.  
<https://doi.org/10.1063/5.0137324>
41. *Kwon T.H., Park S., Ha J.M., Youn Y.-S.* // *Nucl. Eng. Technol.* 2021. V. 53. Iss. 6. P. 1939.  
<https://doi.org/10.1016/j.net.2020.12.024>
42. *Shermukhamedov S., Probst M.* // *Phys. Plasmas.* 2023. V. 30. P. 123901.  
<https://doi.org/10.1063/5.0167840>
43. *Cupak C., Szabo P.S., Biber H., Stadlmayr R., Grave C., Fellingner M., Brötzner J., Wilhelm R.A., Möller W., Mutzke A., Moro M.V., Aumayr F.* // *Appl. Surf. Sci.* 2021. V. 570. P. 151204.  
<https://doi.org/10.1016/j.apsusc.2021.151204>
44. *Szabo P.S., Cupak C., Biber H., Jaggi N., Galli A., Wurz P., Aumayr F.* // *Surf. Interfaces.* 2022. V. 30. P. 101924.  
<https://doi.org/10.1016/j.surfin.2022.101924>
45. *Diddens C., Linz S.J.* // *Eur. Phys. J. B.* 2015. V. 88. P. 190.  
<https://doi.org/10.1140/epjb/e2015-60468-7>
46. *Behrisch R., Eckstein W.* *Sputtering by Particle Bombardment.* Heidelberg–Berlin: Springer–Verlag, 2007. 509 p. DOI:10.1007/978-3-540-44502-9
47. *Matsunami N., Yamamura Y., Itikawa Y., Itoh N., Kazumata Y., Miyagawa S., Morita K., Shimizu R., Tawara H.* // *At. Data Nucl. Data Tables.* 1984. V. 31. Iss. 1. P. 1.  
[https://doi.org/10.1016/0092-640X\(84\)90016-0](https://doi.org/10.1016/0092-640X(84)90016-0)
48. *Mikhailov V.S., Babenko P.Yu., Shergin A.P., Zinoviev A.N.* // *Plasma Phys. Rep.* 2024. V. 50. Iss. 1. P. 23.  
<https://doi.org/10.1134/S1063780X23601682>
49. *Mahne N., Čekada M., Panjan M.* // *Coatings.* 2022. V. 12. P. 1541.  
<https://doi.org/10.3390/coatings12101541>
50. *Carter G.* // *J. Phys. D.* 2001. V. 34. P. R1.  
<https://doi.org/10.1088/0022-3727/34/3/201>
51. *Behrisch R.* *Sputtering by Particle Bombardment I.* Berlin–Heidelberg–New York: Springer-Verlag, 1981. 281 p.
52. *Vantomme A.* // *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B.* 2016. V. 371. P. 12.  
<https://doi.org/10.1016/j.nimb.2015.11.035>
53. *Nagasaki T., Hirai H., Yoshino M., Yamada T.* // *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B.* 2018. V. 418. P. 34.  
<https://doi.org/10.1016/j.nimb.2017.12.023>
54. *Eckstein W., Mashkova E.S., Molchanov V.A., Sidorov A.V., Zhukova Yu.N.* // *Appl. Phys. A.* 1993. V. 57. P. 271.  
<https://doi.org/10.1007/BF00332602>

## Effect of Grain Size and Texture of Polycrystalline Tungsten on Ion-Beam Sputtering

R. Kh. Khisamov<sup>1, \*</sup>, N. N. Andrianova<sup>2, 3</sup>, A. M. Borisov<sup>1, 2, 3</sup>, M. A. Ovchinnikov<sup>2</sup>,  
R. R. Mulyukov<sup>1</sup>

<sup>1</sup>*Institute for Metals Superplasticity Problems RAS, Ufa, 450001 Russia*

<sup>2</sup>*Skobeltsyn Institute of Nuclear Physics, Moscow State University, Moscow, 119991 Russia*

<sup>3</sup>*Moscow Aviation Institute, Moscow, 125993 Russia*

*\*e-mail: r.khisamov@mail.ru*

The effect of grain size and texture of polycrystalline tungsten on the sputtering yield and surface morphology under high-dose irradiation with 30 keV Ar<sup>+</sup> ions has been studied. Samples with an average grain size from 300 nm to 7 μm, without texture and with a [001] texture have been used in the experiment. It is shown that the ion-induced surface morphology strongly depends on the grain size and irradiation fluence. The grain size has little (less than 10%) effect on the sputtering yield, while the texture can reduce the sputtering yield by a factor of two. An experiment with varying the angle has shown that the channeling effect is the reason for the two-fold decrease in the sputtering yield for textured samples. The influence of the surface relief on the sputtering yield has been analyzed. An expression taking into account atomic redeposition and ion reflection is proposed to predict the sputtering yield of a surface with ion-induced relief.

**Keywords:** tungsten, severe plastic deformation, high-pressure torsion, ultrafine-grained structure, texture, ion irradiation, Ar<sup>+</sup>, cones, sputtering yield, simulation, redeposition, channeling.