

Поперенко Л. В., Стащук В. С., Вінніченко М. В.,
Бардамід О. Ф., Мелешук О. І., Войцєня В. С.

ЕЛІПСОМЕТРИЧНІ ДОСЛІДЖЕННЯ МОДИФІКАЦІЇ ПОВЕРХНІ ДЗЕРКАЛ З НЕРЖАВІЮЧОЇ СТАЛІ ПРИ ОПРОМІНЕННІ ІОНАМИ D^+ ТА Ar^+

Досліджено дзеркала із полікристалічної нержавіючої сталі, опромінені пучками моноенергетичних іонів D^+ та Ar^+ з енергіями, які не перевищували 1,5 кеВ. З метою опису модифікації поверхні дзеркал при іонному опроміненні застосовували еліпсометрію при багатьох кутах падіння світла (довжин хвилі $\lambda = 632,8$ нм), спектральну еліпсометрію (енергія зондуєчих фотонів $h\nu = 0,49—5,00$ еВ) та скануючу електронну мікроскопію. Дослідження спектрів оптичних характеристик для нержавіючої сталі показало, що опромінення іонами Ar^+ зумовлює більше зменшення оптичної провідності у всьому спектральному інтервалі, ніж опромінення іонами D^+ такої ж енергії, та при близьких значеннях товщини розпиленого шару. В обох випадках спостерігається суттєве розширення відповідних смуг поглинання. За даними скануючої електронної мікроскопії мікрорельєф поверхні у випадках обробки різними іонами відрізняється, проте моделювання оптичних властивостей у наближенні ефективного середовища продемонструвало, що зміни оптичних властивостей дзеркал не можуть бути пояснені тільки зміною шорсткості поверхні й формування дефектів у приповерхневому прошарку також має бути враховано.

Вступ

Оптичні дослідження вищих шарів атмосфери, діагностика високотемпературної плазми та інші галузі сучасної прикладної науки і техніки вимагають розробки надійних оптичних пристроїв, які б могли працювати в умовах опромінення пучками високоенергетичних частинок. Поворотні дзеркала як основний елемент пристроїв для визначення параметрів плазми перебувають під дією рентгенівського і γ -випромінювання, а також бомбардування нейтронами і атомами перезарядки з широким розподілом енергій. Таке опромінення може, зокрема, викликати істотне зменшення відбивальної здатності металевих дзеркал внаслідок збільшення шорсткості поверхні, розупорядкування і змін стехіометрії приповерхневого шару та накопичення дефектів у приповерхневому шарі. Опромінення атомами перезарядки можна імітувати за допомогою іонів ізотопу водню з широким розподілом енергій порядку кеВ [2]. Вплив опромінення різними іонами на оптичні властивості дзеркал з нержавіючої сталі та інших матеріалів детально досліджувалося в працях [2—7] з метою найкращого вибору матеріалу із достатньо високою відбивальною здатністю у широкому спектральному діапазоні,— як до, так і після опромінен-

ня. Цю умову задовольняють дзеркала, вироблені з аустенітної нержавіючої сталі $O_4Cr_{16}Ni_{11}Mn_3T$, тому що навіть стравлення поверхневого шару товщиною ~ 3 μm не призводить до значних змін відбивальної здатності [4].

З метою інтерпретації результатів експерименту необхідно визначити принципові механізми модифікації оптичних властивостей під впливом опромінення певної металічної поверхні певними іонами. У продовження наших попередніх досліджень особливостей модифікації поверхні для дзеркал з нержавіючої сталі [4] при товщині стравленого шару до 4 мкм, метою цієї статті є детальне вивчення оптичних характеристик дзеркал з нержавіючої сталі до і після опромінення іонами D^+ та Ar^+ з енергіями порядку 1 кеВ і товщиною стравленого шару не менше 1,8 мкм, а також їхній аналіз із врахуванням результатів скануючої електронної мікроскопії.

Експеримент

Дзеркала було виготовлено шляхом полірування зразків з нержавіючої сталі алмазною пастою до досягнення найвищої відбивальної здатності. Після тривалого іонного бомбардування було отримано дві групи зразків. До першої групи входять зразки з аустенітної нержавіючої

сталі $O_4Cr_{16}N_{11}M_3T$ без текстури, включаючи неопромінене дзеркало (зразок 1), дзеркала, опромінені моноенергетичними пучками іонів D^+ з енергією $E=1,43$ кеВ і товщиною стравленого шару $h=2,62$ мкм (зразок 2) та Ar^+ з енергією $E=1,43$ кеВ, $h=1,8$ мкм (зразок 3) і $h=2,86$ мкм (зразок 4). Друга група включає дзеркала з нержавіючої сталі з післяпрокатною текстурою (111), опромінені моноенергетичними пучками іонів D^+ з енергією $E=0,3$ (зразок 5), $0,65$ (зразок 6) і $1,43$ кеВ (зразок 7) і товщиною стравленого шару $h=4$ мкм.

Оптичні вимірювання проводились за допомогою багатокутової еліпсометрії з довжиною хвилі $\lambda = 632,8$ нм і діапазоном кутів падіння світла $\varphi = 69\text{—}81^\circ$ на універсальному еліпсометрі ЛЕФ-3М-1 за методикою, описаною в [7]. Визначали кутові залежності зсуву фаз Δ між ортогональними компонентами вектора поляризації і азимуту відновленої лінійної поляризації Ψ . Для аналізу впливу іонного опромінення на оптичні властивості дзеркал будували залежності $\cos \Delta$ і $\text{tg } \Psi$ від кута падіння φ . Експериментальні дані апроксимували поліномами другого порядку для $\cos \Delta(\varphi)$ і третього порядку — для $\text{tg } \Psi(\varphi)$ для визначення так званого головного кута падіння $\varphi = \varphi_0$ ($\Delta = \pi/2$) і значення $\text{tg } \Psi$ в околі цього кута. Це дозволило отримати значення ефективних показників заломлення n і поглинання k з найбільшою точністю.

Спектральні залежності цих оптичних характеристик — n і k , дійсної $\epsilon_1 = n^2 - k^2$ та уявної $\epsilon_2 = 2nk$ частин комплексної діелектричної функції, оптичної провідності (ОС) $\sigma = nk\nu$ (де ν — частота світла) і коефіцієнта відбиття $R = [(n-1)^2 + k^2] / [(n+1)^2 + k^2]$ визначали за допомогою методу Бітті [8] для енергій зондуємого випромінювання в діапазоні $h\nu = 0,49\text{—}5,00$ еВ. Ці розрахунки виконувались при постійному куті падіння $\varphi = 74^\circ$.

Всі оптичні дослідження виконувались *ex-situ* в атмосферному повітрі. Після іонного опромінення металеві зразки перебували на повітрі протягом часу, достатнього для утворення пасивуючої плівки на поверхні. Оскільки товщина плівки становить кілька нанометрів, то вона повинна робити однаковий внесок у значення еліпсометричних параметрів для всіх зразків і не може мати істотного впливу на результати оптичних досліджень. Тому для розрахунків оптичних характеристик металу на базі знайдених значень Δ і $\text{tg } \Psi$ можна застосувати модель напівнескінченного ефективного провідного середовища. Похибка розрахунків для оптичних констант не перевищувала 1% у видимому і 2—3% у ближньому УФ та ІЧ діапазоні.

Мікрорельєф зразків після іонного бомбардування вивчали за допомогою скануючої електронної мікроскопії (СЕМ). Для порівняння даних СЕМ з результатами еліпсометричних досліджень оптичні характеристики опромінених зразків моделювали з використанням наближення ефективного середовища у підході Брюгема-на [9].

Обговорення результатів

Оптичні параметри для всіх зразків, окрім зразка 4, розраховані з використанням еліпсометричного методу, наведено в таблиці 1.

Результати для зразка 1, який не був опромінений, використовувались як реперні дані для обох груп зразків. Можна помітити, що в цілому бомбардування зразків — як без текстури, так і з текстурою, призводило до зменшення значень φ_0 і збільшення значень $\text{tg } \Psi$ в околі φ_0 . Зокрема, бомбардування іонами D^+ викликало зменшення головного кута на $1,54^\circ$ для зразка 2, на $1,74^\circ$ — для зразка 5, і на $2,59^\circ$ та $2,76^\circ$ — для зразків 6 та 7 відповідно.

Еліпсометричні дані корелюють з даними СЕМ, яка виявила майже трикратне зростання середньої висоти мікрорельєфа із збільшенням енергії іонів D^+ з $E=0,3$ кеВ до $0,65$ кеВ [4]. Подальше збільшення енергії іонів D^+ до $E=1,43$ кеВ (sample 7) не вносило змін у середню висоту мікрорельєфу у порівнянні із зразком 6, що виявлялось у насиченні значень оптичних характеристик. Тому спостережувані зміни оптичних характеристик для всіх зразків, опромінені іонами D^+ , головним чином спричинені модифікацією мікрорельєфу після іонного бомбардування. Однак зразки 2 і 7, опромінені іонами D^+ з тією ж енергією $1,43$ кеВ, але з різними дозами опромінення, мають різні значення еліпсометричних параметрів і ефективних оптичних констант за майже однакового мікрорельєфу [4]. Цю різницю можна пояснити, припустивши, що накопичення приповерхневих дефектів

Таблиця 1
Головний кут падіння φ_0 , значення $\text{tg } \Psi$ в околі цього кута, значення ефективних оптичних показників n і k і розрахункові значення коефіцієнта відбиття R при нормальному падінні для досліджуваних зразків з нержавіючої сталі

Дзеркало з нержавіючої сталі	φ_0 , градусів	$\text{tg } \Psi$	n	k	R
Зразок 1	79,42	0,581	2,60	4,57	0,693
Зразок 2	77,88	0,609	2,14	3,95	0,67
Зразок 3	74,49	0,627	1,51	3,13	0,624
Зразок 5	77,68	0,625	2,01	3,93	0,67
Зразок 6	76,83	0,610	1,96	3,60	0,64
Зразок 7	76,66	0,596	2,01	3,51	0,62

також може відігравати роль у формуванні оптичного відгуку для опромінених зразків.

Бомбардування іонами Ag^+ (зразок 3) навіть при менших дозах опромінення, ніж у випадку D^+ , призводило до великого зменшення значення φ_0 на $4,93^\circ$ і збільшення значення $tg \Psi$ на 8 %, в той час як для зразка 2, опроміненого D^+ , такі зміни становили $1,54^\circ$ і 4 % відповідно. Значення ефективних показників заломлення і поглинання також зазнавали більш істотного зменшення у випадку опромінення іонами Ag^+ , ніж у випадку іонів D^+ , в той час як розраховані значення коефіцієнтів відбиття при нормальному падінні змінювались менше. Відхилення, що спостерігались у випадку опромінення Ag^+ , були більшими майже вдвічі, ніж при травленні іонами D^+ (якщо порівнювати з неопроміненим зразком), і можуть бути пояснені різною висотою сформованих шорсткостей на поверхні дзеркал, з одного боку, і накопиченням дефектів у приповерхневому шарі дзеркал в результаті іонно-бомбардування, з іншого боку.

Важливо відзначити, що зміни коефіцієнта відбиття при нормальному падінні для опромінених дзеркал з нержавіючої сталі, розраховані за еліпсометричними даними, наведеними в таблиці 1, є меншими, порівняно з неопроміненим зразком, ніж ті, які було отримано раніше з безпосередніх вимірювань R для зразків 5—7 [4]. Водночас, для мідних дзеркал, опромінених іонами Cu^+ і Ne^+ [2], результати безпосередніх вимірювань R і розрахунки за еліпсометричними даними узгоджувались значно краще. Одна з можливих причин полягає в тому, що значення головного кута для мідних дзеркал лежать в межах 67 — 72° , в той час як для зразків з нержавіючої сталі — в діапазоні 74 — 80° при довжині хвилі $\lambda = 632,8$ нм. Така різниця може призводити до більшої похибки у розрахунок коефіцієнта відбиття внаслідок збільшення ефектів деполаризації зондуючого випромінювання поверхнею зразків при більших кутах падіння світла.

Для з'ясування природи змін оптичних характеристик дзеркала з нержавіючої сталі детально досліджувались за допомогою скануючої електронної мікроскопії з метою одержання інформації про мікрорельєф поверхні, а потім — методом спектральної еліпсометрії з моделюванням оптичного відгуку приповерхневого шару. Дані СЕМ для зразків з нержавіючої сталі, опромінених моноенергетичними іонними пучками, вказують на появу плато, які мали менший розмір у випадку бомбардування іонами Ag^+ , ніж при опроміненні іонами D^+ .

З метою глибшої оптичної характеристики металевих поверхонь, було розраховано і проаналізовано спектральні залежності оптичної

провідності. Ці спектри характеризують особливості електронної структури матеріалу. Спектр оптичної провідності для неопроміненого зразка має смуги поглинання, типові для чистого заліза, які знаходяться поблизу значень енергії фотонів 2,0 і 2,7 еВ. Опромінення іонами D^+ вело до зменшення оптичної провідності у всьому спектральному діапазоні разом з істотним розширенням цих смуг. Опромінення іонами Ag^+ викликало більш істотне зменшення σ , ніж у випадку бомбардування іонами D^+ , із майже повним стиранням згаданих особливостей. Важливо, що зміни у спектрах оптичної провідності для зразків 2 і 4 є більшими в діапазоні $h\nu = 1$ — 4 еВ, де розташовані характерні смуги поглинання. На енергетичних інтервалах $h\nu = 0,5$ — 1 еВ і $h\nu = 4$ — 5 еВ спостережувані зміни є меншими. Також важливим є те, що різниця у спектрах оптичної провідності для неопроміненого зразка і зразків, опромінених іонами D^+ (зразок 2) та Ag^+ (зразок 4), зростає із збільшенням $h\nu$.

Для прояснення природи цих змін було проведено моделювання спектральних залежностей оптичних показників n і k , дійсної ϵ_1 та уявної ϵ_2 частин комплексної діелектричної функції, оптичної провідності σ та коефіцієнта відбиття R у наближенні ефективного середовища (НЕС) в підході Брюгемана.

Для опису модифікації мікрорельєфу при іонному опроміненні було вибрано дві моделі ефективного середовища:

Модель 1 — поглинаюча плівка товщиною 17 нм на підкладці з нержавіючої сталі, плівка являє собою гомогенну суміш порожнин і матеріалу підкладки. Вибрана товщина є близькою до типових значень товщини ушкодженого шару при опроміненні іонами D^+ і Ag^+ . Було проведено розрахунки у підході НЕС-Брюгемана для різних значень частки порожнин в межах 0,1—0,5. Оптичні константи неопроміненого зразка з нержавіючої сталі вважали значеннями оптичних констант субстрату в цій моделі.

Модель 2 — напівнескінченне середовище, що являє собою гомогенну суміш неопроміненого матеріалу дзеркала і порожнин (з їх об'ємною часткою 0,1—0,5).

Аналіз показав, що модель 2 виявляла залежності оптичної провідності, ближчі до експериментальних, ніж модель 1, однак у жодному з підходів не вдалося отримати повного збігу поведінки розрахункового спектра з експериментальними даними для зразків 2 і 4, опромінених іонами D^+ і Ag^+ відповідно.

Хоча аналіз СЕМ вказує на більш розвинений мікрорельєф у випадку опромінення іонами Ag^+ , моделювання у наближенні ефективного середовища показали модифікацію оптичних

властивостей, що не можна пояснити виключно в термінах збільшення шорсткості поверхні, і в подальших працях необхідно дослідити вплив інших факторів (накопичення дефектів і розупорядкування приповерхневого шару). Розширення смуг поглинання і збільшення різниці в значеннях σ у видимій області свідчать про можливе розупорядкування приповерхневого шару при іонному бомбардуванні.

Висновки

1. Бомбардування дзеркал з нержавіючої сталі іонами D^+ з енергією 0,3—1,43 кеВ погіршує їхні оптичні характеристики в першу чергу внаслідок модифікації мікрорельєфу, що відбувається під впливом іонного опромінення.

2. Встановлено, що опромінення дзеркал з нержавіючої сталі моноенергетичним пучком

іонів Ar^+ з енергією $E=1,43$ кеВ викликала більш значні зміни оптичної провідності і оптичних показників, ніж опромінення іонами D^+ з тією ж енергією.

3. Запропоновані моделі наближення ефективного середовища не можуть повністю пояснити модифікацію оптичних властивостей дзеркал з нержавіючої сталі внаслідок зміни частки порожнин у приповерхневому шарі дзеркал.

4. Зміни оптичних властивостей дзеркальних поверхонь зразків з нержавіючої сталі, що спостерігались при опроміненні іонами, не можуть бути пояснені в термінах збільшення шорсткості поверхні, і тому треба також враховувати вплив появи приповерхневих дефектів і розупорядкування приповерхневого шару.

1. *H. Verbeek and ASDEX Team. J. Nucl. Mater.*— 1987, Vol. 523.— P. 145—147.
2. *Voitsenya V. S., Bardamid A. F., Borisenko Yu. N. et al. Imitations of effects of a fusion reactor environment on optical properties of metallic mirrors // J. Nucl. Mater.*— 1996, Vol. 1239.— P. 233—237.
3. *Poperenko L. V., Voitsenya V. S., Vinnichenko M. V., Kononov V. G. et al. Optical effects of metallic mirrors surface modification // Surf. and Coat. Technology.*— 1999, Vol. 200.— P. 114.
4. *Bardamid A. F., Bryk V. V., Kononov V. G. et al. Change of structure and optical properties of metal surfaces under bombardment with ions of a deuterium plasma [in Russian] // Abs. of 14th Int. Conf. on Ion-Surface Interactions: Zvenigorod, Russia.— Moscow Aviation Institute Publishing.— 1999, Vol. 2.— P. 305—308.*
5. *Grigorenko B. V., Mikhalchenko R. S., Voitsenya V. S. Ellipsometric analysis of irradiated copper mirrors // Functional Materials.*— 1995, N 2.— P. 275.
6. *Bardamid A. F., Gritsyna V. T., Kononov V. G. et al. Ion energy distribution effects on degradation of optical properties of ion-bombarded copper mirrors // Surf. and Coat. Technol.*— 1998, Vol. 365.— P. 103—104.
7. *Voitsenya V. S., Bardamid A. F., Bereznyi V. L. et al. Imitation of fusion reactor environment effects on the inner elements of spectroscopical, mm and sub-mm diagnostics, in: "Diagnostics for Experimental Thermonuclear Fusion Reactors" // Ed. by Scott P. E. et al., New York: Plenum Press, 1996.— P. 61—70.*
8. *Gorban N. Ya., Poperenko L. V. Optimised version of the Beattie-Kone method for studies of peculiarities of optical properties of nickel in the visible spectrum range [in Russian] // Zhurn. Prikl. Spectr.*— 1980, Vol. 33.— P. 706—711.
9. *Roussel Ph. J., Vanhellmont J., Maes H. E. Numerical aspects of effective medium approximation models in spectroscopic ellipsometry regression software // Thin Solid Films.*— 1993, Vol. 234.— P. 423—427.
10. *D. E. Aspnes. Optical properties of thin films // Thin Solid Films.*— 1982, Vol. 249.— P. 89.

Poperenko L. V., Staschuk V. S., Vinnichenko M. V., Bardamid O. F., Meleschuk O. I., Voicenia V. S.

THE ELLIPSOMETRIC INVESTIGATIONS OF MODIFICATIONS OF STAINLESS STEEL MIRROR'S SURFACES IRRADIATED BY D^+ AND Ar^+ IONS

The polycrystalline stainless steel mirrors irradiated by D^+ and Ar^+ ions of given energy not exceeding 1,5 keV were studied. The multiple angles of incident light ellipsometry (wavelength $\lambda = 632.8$ nm), spectral ellipsometry (probing photons energy range $h\nu = 0,49—5,00$ eV) and scanning electron microscopy were applied to characterise the surface modification under the ion treatment. Studies of optical characteristics spectra have shown that stainless steel mirror bombardment by Ar^+ ions deteriorates its optical conductivity in the whole spectral interval more than bombardment by D^+ ions of the same energy, with similar values of the sputtered layer thickness. In both cases, significant broadening of absorption bands was observed. The scanning electron microscopy has revealed changes in surface microrelief in case of treatment by different types of ions, however, simulations using effective medium approximation have shown that changes of optical properties for specular surfaces could not be explained only in terms of the surface roughening and influence of the subsurface defects formation and subsurface layer disordering should be considered.