

94-193



ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ
ДУБНА

94-193

Д13-94-193

С.А.Корнев, Н.И.Балалыкин, В.В.Сиколенко,
О.Л.Орелович, Д.М.Широков

НАПЫЛЕНИЕ ПЛЕНОК
С ИОННЫМ ПЕРЕМЕШИВАНИЕМ
В ИМПУЛЬСНОМ ВЗРЫВОЭМИССИОННОМ
ИОННОМ ДИОДЕ

Направлено в журнал «Приборы и техника эксперимента»

1994

В последние годы в пучковых технологиях интенсивно исследуется эффект перемешивания тонких пленок с подложкой импульсными электронными и ионными пучками /1/. Этот эффект состоит в перемешивании взаимно растворимых и нерастворимых друг в друге элементов. В настоящее время получены многие системы с перемешиванием, например, Pb/Fe, Ag/Fe, Cu/Fe, при помощи облучения сильноточным пучком ионов углерода /2/.

Однако значительно больший интерес для технологии представляет ионное перемешивание во время напыления пленки на подложку /3/. В этом случае идет непрерывный или попеременный процесс напыления и облучения. Для реализации этих режимов необходимы соответствующие источники ионов и устройства для перемещения подложки под источник ионов и потока паров исходных материалов, что ограничивает технологические возможности /3/. Из анализа различных источников ионов /4/ можно сделать вывод о том, что наиболее подходящим для этих целей является источник ионов со взрывной ионной эмиссией /5/, в котором вместе с формированием ионного пучка наблюдается интенсивное распыление материала инциатора анодной плазмы /6/. Такое взрывное распыление влечет за собой импульсную конденсацию частиц материала инциатора анодной плазмы на подложку. При этом удачно сочетается напыление пленки с ионным облучением.

В данной работе исследуется эффект перемешивания двух систем элементов: Ti/Al и Al/Be. Первая система связана с проблемой конструкционных материалов, а другая - с ресурсом работы бериллиевой фольги, плакированной алюминием, при прохождении через нее быстрых электронов в ускорителях электронов.

1. Метод напыления, ионное и электронное перемешивание

Основные принципы импульсной вакуумной взрывной ионной конденсации рассмотрены в /6,7/. Ее основная идея заключается в следующем. При подаче на анод вакуумного диода импульса напряжения положительной полярности на его поверхности, обращенной в сторону катода, зажигается анодная плазма. Ее формирование сопровождается интенсивным распылением материала анода. Распыленный материал анода в виде кластеров и микрокапель осаждается на подложку, которая

располагается за катодом. При напылении можно использовать два режима работы диода:

а) без закорачивания диода анодной плазмой, когда длительность импульса напряжения $t_{и}$ меньше времени закорачивания диода:

$$t_{и} < t_{зак} = \frac{D}{V_{ap}}, \quad (1)$$

где D - расстояние между анодом и катодом, V_{ap} - продольная скорость анодной плазмы;

б) с закорачиванием диода анодной плазмой, когда длительность $t_{и}$ больше времени закорачивания диода анодной плазмой:

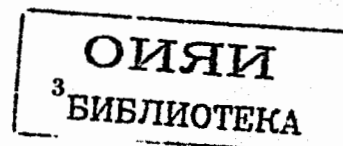
$$t_{и} > t_{зак} = \frac{D}{V_{ap}}. \quad (2)$$

В первом режиме работы ионного диода время распыления материала t_p сравнимо с длительностью импульса ионного тока, а во втором режиме $t_p > t_{и}$. Сравнение этих двух режимов показывает, что второй режим позволяет увеличить скорость напыления, что связано с большой величиной разрядного тока в диоде. Временные диаграммы второго режима напыления, представленные на рис. 1, поясняют вышесказанное. Действительно, при закорачивании диода анодной плазмой амплитуда импульса напряжения уменьшается (штриховая линия импульс U), а полный ток (разрядный ток) возрастает (импульс J_p). Этот процесс характеризуется усилением эрозии анода и, следовательно, увеличением массопереноса материала анода. Ионная модификация осуществляется пучком ионов, который формируется в этом режиме до закорачивания диода анодной плазмой (импульс J_b). Необходимо отметить, что первый пучок ионов осуществляет "чистку" поверхности подложки. Процессы повторяются с частотой, определяемой в основном параметрами генератора импульсного напряжения.

Взаимодействие импульсного пучка ионов с твердым телом характеризуется следующими эффектами:

- образованием дефектов и захватом дефектов структуры ловушками;
- фазовыми переходами, связанными с быстрым нагревом твердого тела на глубине пробега ионов и последующим охлаждением.

В рассматриваемых экспериментах образование дефектов носит сложный характер, т. к. напыление пленки осуществляется из кластерной и микрокапельной фаз, поэтому существующие модели взаимодействия ионного пучка с твердым телом /8/ трудно применимы для трактовки результатов ионной модификации.



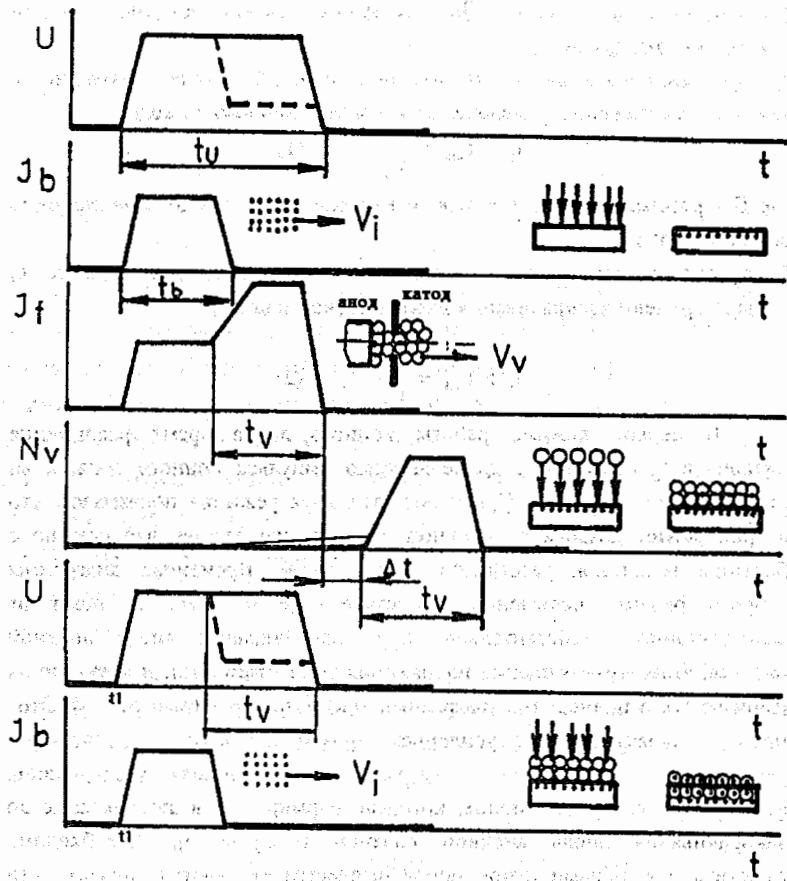


Рис. 1. Временные диаграммы напыления пленок и их ионной модификации в импульсном взрывоэмиссионном ионном вакуумном диоде:

U - напряжение на диоде; J_b - ток ионного пучка; J_f - полный ток в диоде; N_v - паровая фаза материала инициатора анодной плазмы; V_i - поток ионов; V_v - поток пара; t_u - длительность импульса напряжения; t_u - длительность импульса тока пучка; t_1 , t_2 - начало следующего импульса напряжения и тока пучка соответственно;

..... - ионы; ooooo - паровая компонента материала инициатора анодной плазмы.

o → - паровое осаждение на подложку;

• → - ионное облучение

Оценим температурные режимы в системах: напыляемая пленка-подложка, напыляемая пленка-пленка-подложка. Для этого воспользуемся тепловой моделью взаимодействия импульсного пучка заряженных частиц с твердым телом. Для выбора формулы для расчета температурных режимов необходимо вычислить отношение длительности импульса тока пучка t_n и тепловой постоянной вещества τ_p [9].

$$\tau_p = \frac{2h_e^2 \rho c}{\lambda} \quad (3)$$

где h_e - глубина пробега частиц; ρ , c , λ - плотность, удельная теплоемкость и удельная теплопроводность облучаемого материала.

В таблице № 1 приведены эти данные для следующих систем:

- напыляемая пленка Ti на Al;
- напыляемая пленка Al на Be.

Таблица № 1

материал	ионы	кинет. энергия, кэВ	тепловая постоян., нс	длит. импульса тока, t_1 , нс	t_1/τ_p	длит. импульса, t_2 , нс	t_2/τ_p
Al	Ti ⁺	300	1.5	100	67	300	201
Ti	Ti ⁺	300	60	100	1.7	300	5.1
Be	C ⁺	300	12	100	8.3	300	25
Be	Al ⁺	300	1	100	100	300	300

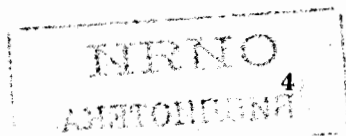
Из таблицы № 1 следует, что $\tau_p < t_{1,2}$. В этом случае температуру T_1 можно рассчитать по формуле [9]:

$$T_1 = \frac{2Wt_u^{1/2}}{(\pi\lambda\rho c)^{1/2}} \quad (4)$$

где W - плотность мощности пучка ионов, t_u - длительность импульса тока ионов.

На рис. 2 приведены зависимости T_1 от длительности импульса для описываемых в работе экспериментов. Из них видно, что только для алюминия температура при облучении приближается к температуре плавления. Однако проплава алюминия под пленкой титана не наблюдается, потому что во время облучения идет процесс напыления пленки титана.

Рассмотрим особенности импульсного электронного облучения. Значения тепловых постоянных τ_p исследуемых материалов, рассчитанных по формуле (3) для электронного пучка с энергией 100 ÷



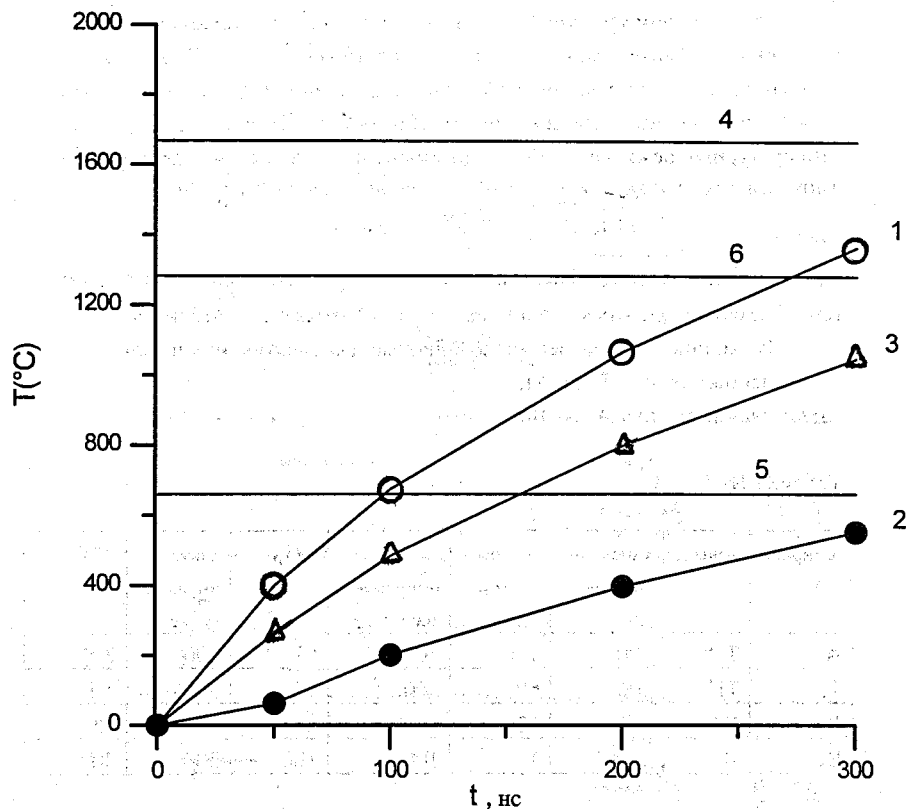


Рис. 2. Зависимость температуры T от длительности импульса t при облучении ионами титана пленки титана - 1 (о), ионами алюминия пленки алюминия - 2 (•) и ионами алюминия бериллиевой фольги - 3 (Δ) при импульсной мощности пучка $\sim 3 \cdot 10^6$ Вт/см²; 4, 5, 6, - температуры плавления Ti, Al, Be соответственно /13/

300 кэВ приведены в таблице № 2. Из них видно, что облучение электронным пучком позволяет получить адиабатические условия нагрева облучаемых образцов, так как $t_n \ll \tau_p$.

Таблица № 2

материал образца	кинет. энергия электронов, кэВ	тепловая пост. τ_p , нс	длит. импульса тока пучка, t_n , нс	t_n / τ_p
Ti	300	$1.6 \cdot 10^7$	300	$1.8 \cdot 10^{-5}$
Al	300	$1.5 \cdot 10^5$	300	$2 \cdot 10^{-3}$
Be	300	$2.7 \cdot 10^5$	300	$1.1 \cdot 10^{-3}$

Температуру T в облучаемом образце на глубине пробега электронов можно в этом случае рассчитать по формуле /12/:

$$T = \frac{2Wt_n}{h_p \rho S C}, \quad (5)$$

где W, t_n - плотность мощности и длительность импульса тока пучка электронов, h_p - глубина пробега электронов, S - площадь облучаемой поверхности, C и ρ - удельная теплоемкость и плотность облучаемого образца.

При плотности тока пучка электронов $j_e \sim 1000$ А/см² и его кинетической энергии 200 ÷ 300 кэВ, $t_n \sim 300$ нс расчетные температуры в несколько раз превышают температуры плавления пленок в рассматриваемых структурах.

В результате проведенного анализа можно сделать следующие выводы:

- облучение импульсным пучком ионов во время напыления пленок позволяет получить условия для осуществления фазовых переходов в получаемых структурах;
- облучение импульсным пучком электронов структур после их напыления с ионным перемешиванием реализует адиабатический нагрев образца до высоких температур, достаточных для различных структурных превращений.

2. Экспериментальная и измерительная аппаратура

Эксперименты по напылению пленок и их модификации проводились на экспериментальной установке "ЭЛИОНА" для получения электронных и ионных пучков ЛСВЭ ОИЯИ /10/.

На рис. 3 приведена блок-схема взрывоэмиссионного диода, работающего в режиме генерации электронных и ионных пучков. В зависимости от полярности импульса напряжения, питающего диод, выбирается режим его работы. Для получения электронных пучков используется импульс напряжения отрицательной полярности, а для ионных - импульс напряжения положительной полярности.

В экспериментах использовался импульсный генератор типа Аркадьева-Маркса. Основные параметры пучков заряженных частиц приведены в таблице № 3.

Ток пучка измерялся LR-интегрирующим поясом Роговского и шунтом тока.

Облучение проводилось при давлении остаточного газа $P \sim 5 \cdot 10^{-5}$ торр.

Исследование топографии поверхности образцов проводились на растровом электронном микроскопе JSM-840 (Japan), а распределения профиля концентрации по глубине - методом обратного Резерфордского рассеяния протонов и методом вторичной ионной масс-спектрографии (ВИМС).

Таблица № 3

сорт частиц	кинетическая энергия, кэВ	плотность тока, А/см ²	длит. импульса тока пучка, нс
ионы С ⁺	150 ÷ 300	60 ÷ 100	300
ионы Ti ⁺	150 ÷ 300	1 ÷ 10	300
ионы Al ⁺	150 ÷ 300	1 ÷ 15	300
электроны	150 ÷ 300	100 ÷ 1000	300

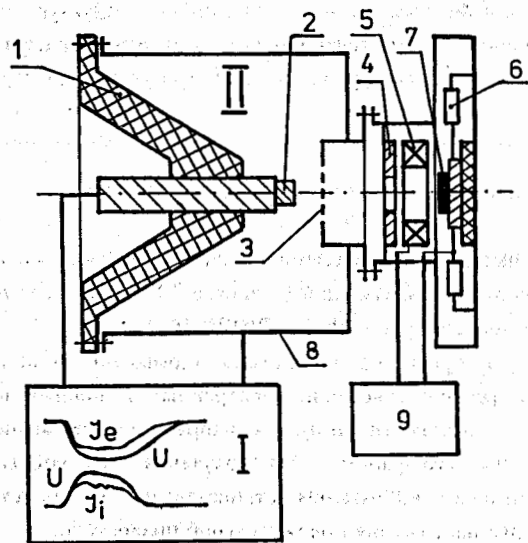


Рис. 3. Блок-схема взрывозащитного вакуумного диода:

- I - генератор Аркадьева-Маркса, II - электрон-ионный источник;
 1-высоковольтный изолятор, 2-инициатор плазмы, 3-вытягивающий электрод, 4-коллиматор,
 5-пояс Роговского, 6-токовый шунт, 7-фольга, 8-вакуумная камера, 9-осциллограф

3. Пленки Ti на Al

На рис. 4 приведено распределение концентрации Ti, Al и O (кривые 1, 2, 3) по толщине пленки, напыленной в режиме без закорачивания диода анодной плазмой. При этом напряжение на диоде составляло 250 кВ, ток пучка ионов ~ 10 А/см², длительность импульса ~ 300 нс. При частоте работы диода 1 Гц время напыления составляло 5 с. Микрофотографии поверхности пленки Ti на Al представлены на рис. 5а. Из рис. 4 видно, что наблюдается ионное перемешивание. Однако характер распределения концентрации показывает, что оно несколько "затянуто" по толщине. Действительно, даже на глубине 1 мкм концентрация Ti ~ 95%, а Al ~ 7%. При этом пленка содержит и кислород. На фотографии видны капли Ti, размеры которых меньше 5 мкм. Увеличение кинетической энергии ионов (увеличение напряжения U на диоде) не приводит к уменьшению размеров этих капель, а уменьшение U до 100 кВ - увеличивает их размеры до 10 ÷ 13 мкм.

Так как температура пленки Ti при ионном облучении достигает ~ 1365 °С, то это также приводит к некоторому увеличению растворимости Ti в Al. Титан в алюминии до температуры 500 °С полностью нерастворим, и только выше 500 °С растворимость составляет ~ 0.002 атомных доли Ti на 1 атомную долю алюминия [11]. Так как глубина пробега ионов Ti в Ti порядка ~ 0.15 мкм, то нет выделения энергии в алюминиевую подложку.

Для улучшения качества поверхности пленки (уменьшения размера зерен и капель) были проведены облучения этих пленок импульсным электронным пучком с кинетической энергией 250 кэВ, плотностью тока 700 А/см² и длительностью импульса ~ 300 нс. После одного импульса электронного пучка качество поверхности пленки улучшилось (см. микрофотографию поверхности пленки на рис. 5б). На рис. 4 кривыми 4, 5, 6 показано распределение концентрации Ti, Al, O в системе пленка Ti-подложка Al. Из сравнения распределений концентраций Ti, Al, O видно, что электронное импульсное облучение позволяет уменьшить содержание кислорода. Так, начиная с глубины 0.5 мкм, кислород практически отсутствует. Наличие кислорода в пленке в настоящее время не представляется возможным объяснить. Кроме того, видно, что граница перемешивания Ti с Al смещается в начало пленки Ti. Начиная с глубины 0.05 мкм виден алюминий. Также длина зоны перемешивания

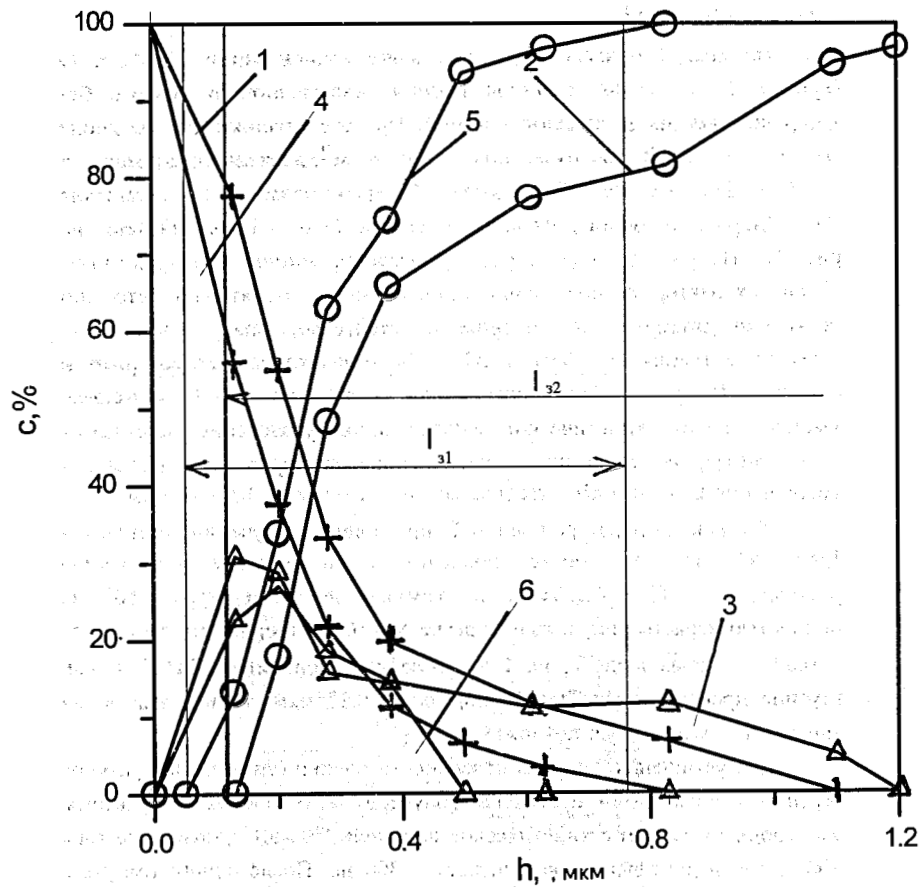


Рис. 4. Распределение концентрации Ti, Al и O по толщине пленки, полученной в режиме без закорачивания диода анодной плазмой:

1 - Ti (+); 2 - Al (o); 3 - O (Δ).

(Модификация ионами Ti)

4 - Ti (+); 5 - Al (o); 6 - O (Δ) - модификация импульсным пучком электронов

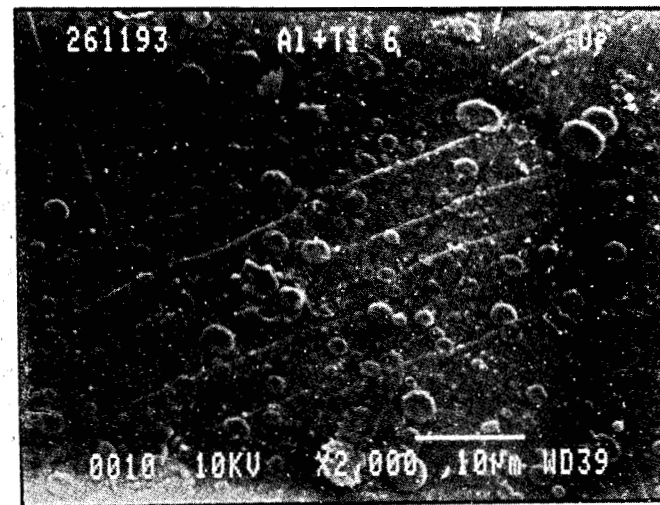


Рис. 5а. Микрофотография поверхности пленки Ti на Al, полученной в ионном диоде без его закорачивания анодной плазмой

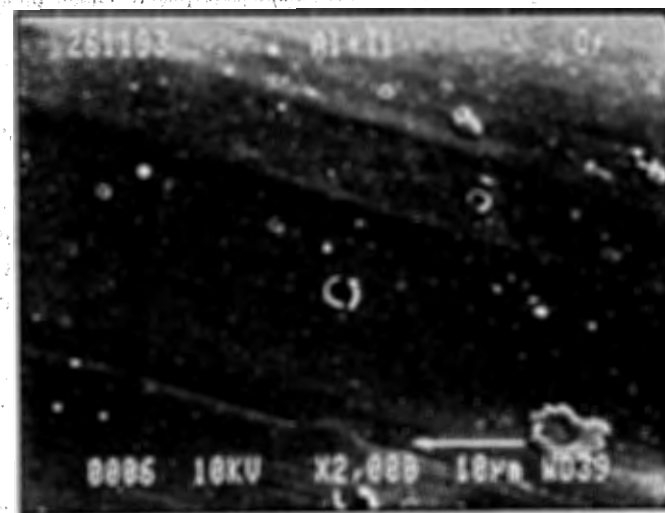


Рис. 5б. Микрофотография поверхности пленки Ti на Al после модификации импульсным электронным пучком

I_3 сокращается по сравнению с пленкой без облучения импульсным электронным пучком (см. рис. 4).

Распределение концентрации Ti и Al по толщине пленки, полученной в ионном диоде с закорачиванием диодного зазора анодной плазмой приведена на рис. 6. В этом случае величина плотности ионного тока меньше и составляет $j \sim 2 \text{ А/см}^2$ при $U \sim 250 \text{ кВ}$ при зазоре между анодом и катодом $\sim 5 \text{ мм}$, а время напыления то же самое (5 с). В этом случае увеличивается массоперенос вещества инициатора анодной плазмы и толщина пленки увеличивается. Из рис. 6 видно, что ионное перемешивание наблюдается только в начальный период, когда пленка еще тонкая, и в ней наблюдается растворение Ti и Al. На рис. 7а приведена микрофотография поверхности пленки Ti на Al. Из нее видно, что пленка состоит из микрокапель, что объясняется малой величиной ионного тока по сравнению с первым случаем (рис. 5а). Облучение импульсным электронным пучком позволяет осуществить проплав пленки. На рис. 7б приведена микрофотография поверхности пленки Ti на Al после облучения одним импульсом пучка электронов с кинетической энергией 250 кэВ, плотностью тока $\sim 700 \text{ А/см}^2$ и длительностью импульса $\sim 300 \text{ нс}$. На микрофотографии виден проплав пленки и некоторые разломы пленки вследствие ее быстрого охлаждения. Для наглядности на обеих фотографиях с края показана поверхность подложки Al.

Результаты показывают, что при напылении пленок в ионном диоде наблюдается перемешивание нерастворимых элементов Ti в Al с помощью импульсного ионного пучка во время напыления. Импульсное электронное облучение улучшает качество поверхности пленки и осуществляет дополнительное перемешивание Ti в Al. Таким образом, ионное перемешивание позволяет получить новый конструкционный материал: алюминий с титановой пленкой.

4. Применение ионного перемешивания для фольг выпускных устройств ускорителей электронов

В ускорителях электронов для вывода пучка из вакуумной камеры в атмосферу или в газ используются тонкие фольги. Устройства вывода пучка электронов работают в условиях больших тепловых нагрузок (из-за потерь электронов в фольге) и механических нагрузок вследствие перепада давления [12]. В настоящее время применяются фольги из

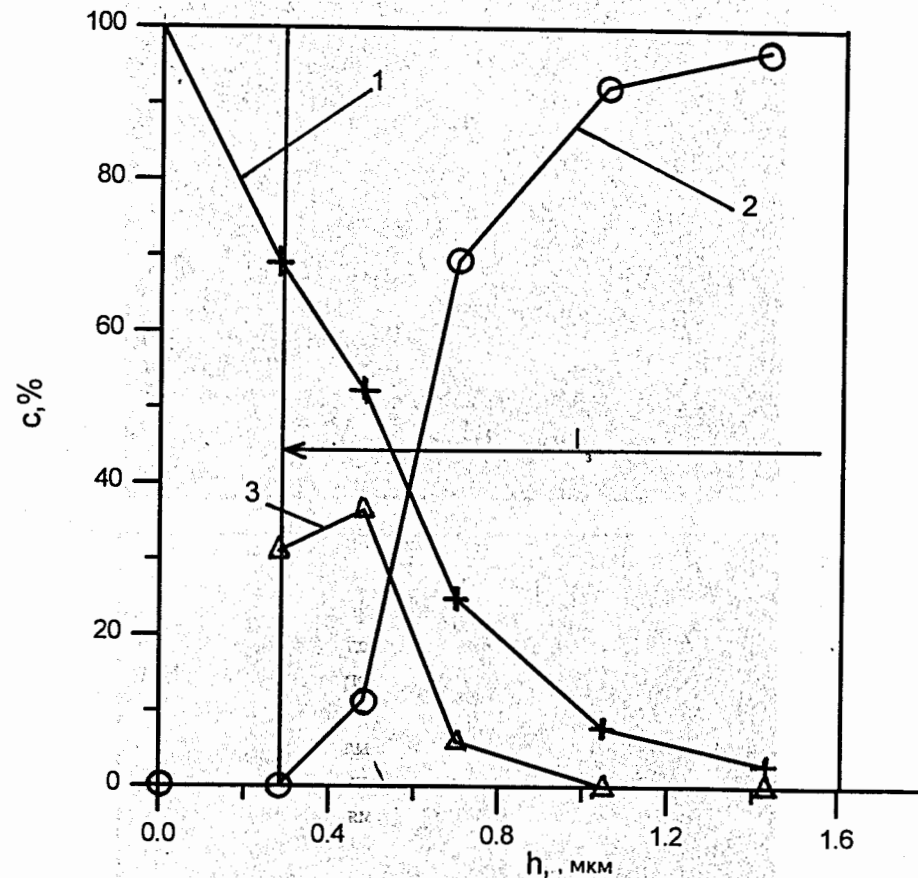


Рис. 6. Распределение концентрации, 1 - Ti (+), 2 - Al (o), 3 - O (Δ), по толщине пленки, напыленной в диоде с закорачиванием анодной плазмой.

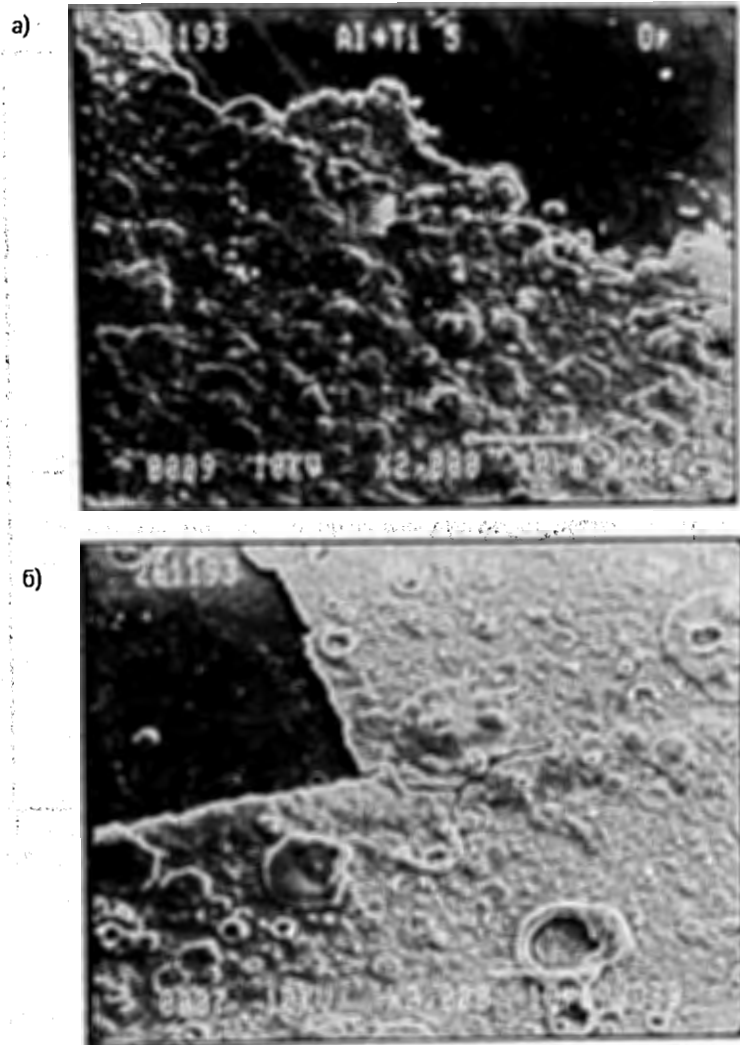


Рис. 7. Микрофотографии поверхности пленки Ti на Al, полученной в импульсном ионном диоде с закорачиванием анодной плазмой (а) и после модификации импульсным электронным пучком (б)

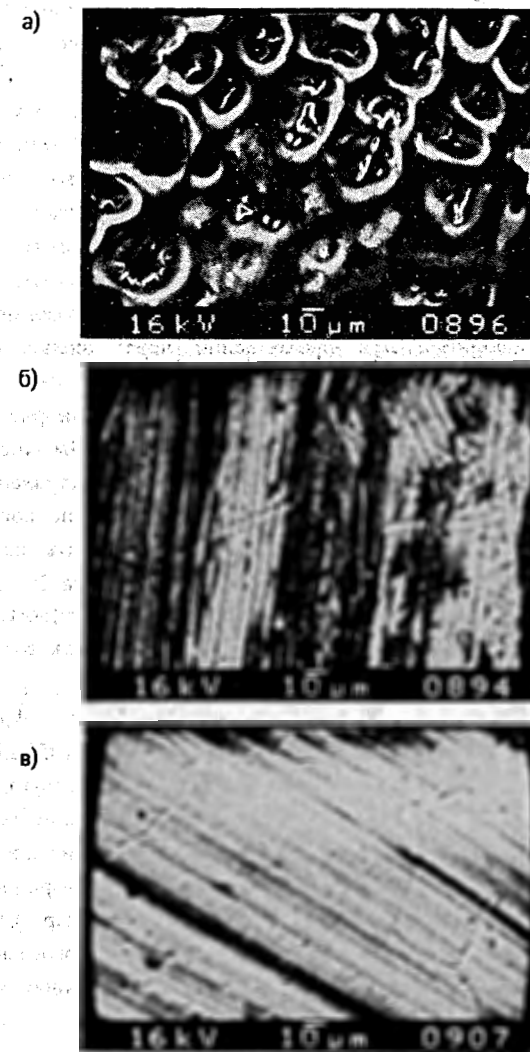


Рис. 8. Микрофотографии поверхности пленки Al на Be после прохождения через нее электронного пучка ($E \sim 100$ кэВ, $j \sim 2.5$ мА/см², $t = 15$ мин.) (а), исходной пленки, напыленной в ионном диоде до пропускания через нее электронов (б) и после прохождения электронного пучка ($E \sim 100$ кэВ, $j \sim 2.5$ мА/см², $t = 1$ ч) (в)

титана, бериллия, бериллия с пленкой алюминия, алюминиевых сплавов. Наибольшее распространение в ускорителях с пучком электронов большого поперечного сечения получили фольги из бериллия, плакированные алюминием. В этом случае для электронов с кинетической энергией ≥ 200 кэВ толщина фольги ≥ 100 мкм, и поэтому она выдерживает большие механические нагрузки на растяжение. Наличие пленки алюминия на бериллии улучшает тепловые характеристики фольги. Анализ поверхности бериллиевой фольги, плакированной алюминием, выпускаемой промышленностью, на сканирующем электронном микроскопе показывает образование серии микрокапель алюминия при прохождении через фольгу бериллия толщиной 5 мкм электронного пучка с кинетической энергией 100 кэВ и плотностью тока ~ 2.5 мА/см² в течение 15 минут (см. рис. 8а). Для сравнения на рис. 8б приведена микрофотография поверхности этой фольги до ее работы с электронным пучком. Для устранения этого недостатка необходимо создать условия, препятствующие образованию микрокапель Al на Be. Этот недостаток можно устранить, используя эффект перемешивания Al в Be при напылении Al на Be в ионном диоде. Алюминий в бериллии практически нерастворим (до $t \sim 646$ °C полностью нерастворим, а при $t \geq 646$ °C растворимость составляет ~ 0.0177 атомных долей Al на 1 атомную долю Be /11/).

Микрофотография поверхности бериллиевой фольги с алюминиевой пленкой, полученной в ионном диоде ($U \sim 250$ кВ, $j_{Al} \sim 5$ А/см², $t_n \sim 300$ нс, $t = 10$ с, $f = 1$ Гц) до работы, представлена на рис. 8б, а после 1 часа работы - на рис. 8в. Их сравнительный анализ показывает отсутствие капельной структуры, что означает увеличение ресурса работы фольги в качестве выпускного устройства для электронов.

Таким образом, можно сделать вывод о перспективности использования ионного перемешивания в технологии изготовления фольг для устройств выпуска пучка электронов из вакуумной камеры в атмосферу.

5. Заключение

В результате проведенных исследований можно сделать следующие выводы:

1. Вакуумная импульсная ионная конденсация позволяет получать пленки нерастворимых элементов ионным перемешиванием в процессе напыления.
2. Последующее облучение импульсным электронным пучком дополнительно перемешивает нерастворимые друг в друге элементы и улучшает качество поверхности пленки.
3. Получены стабильные пленки нерастворимых друг в друге элементов Ti / Al и Al / Be.
4. Напыление пленок Al на бериллиевую фольгу с помощью ионного диода позволяет получать фольги для выпускных устройств электронных ускорителей, ресурс которых превышает промышленные в несколько раз.

В заключение авторы выражают благодарность Иванову И. Н. за плодотворное обсуждение результатов работы и Боровкову Д.Л. за помощь в работе.

Литература

1. Smidt F. A., Hubber G.K. *Nucl. Instr. & Meth.* B80/81, 1993, p.207.
2. Plotnikov S. V., et. al. *Proc. of 3th Int. Conf. on Energy Pulse and Particle Beam Modification of Materials (EPM'89)*, Dresden, 1989, p.305.
3. Габович М. Д., Плешивцев Н. В., Семашко Н. Н. *Пучки ионов и атомов для УТС и технологических целей*, М.: Энергоатомиздат, 1986.
4. Brown I. G. *The Physics and Technology of Ion Source*, N.Y., 1990
5. Korenev S. A. *Proc. of 3th Int. Conf. on Energy Pulse and Particle Beam Modification of Materials (EPM'89)*, Dresden, 1989, p.448.
6. Корнев С. А. *Труды III Международной конференции по электронно-лучевым технологиям, ЕВТ'91*, Варна, 1991, с. 607.
7. Корнев С. А. *Препринт ОИЯИ Р-13-89-615*, Дубна, ОИЯИ, 1989.
8. Диденко А. Н., Лигачев А. Е., Куракин И. Б. *Воздействие пучков заряженных частиц на поверхность металлов и сплавов*, М.: Энергоатомиздат, 1987.
9. Латам Р. *Вакуумная изоляция установок высокого напряжения*, М.: Энергоатомиздат, 1985.
10. Korenev S. A. *Nucl. Instr. & Meth.* B80/81, 1993, p.242.
11. Барабаш О. П., Коваль Ю. М. *Структура и свойства металлов и сплавов*. Киев: Наукова Думка, 1986.

ОИЯИ
БИБЛИОТЕКА

12. Свинын И. П. *Расчет и проектирование высоковольтных ускорителей электронов для радиационных технологий.* М.: Энергоатомиздат, 1989.

13. *Таблицы физических величин.* Справочник под редакцией Кикоина И.К. М.: Атомиздат, 1976.

1

+

Рукопись поступила в издательский отдел
24 мая 1994 года.

ИРНО
АМТОНПАН