

5-20
ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ

Дубна

1058/2-73



P8 - 6855

Н.И.Балалыкин, Ю.В.Муратов, Н.Б.Рубин

УСТАНОВКА
ДЛЯ НАНЕСЕНИЯ СВЕРХПРОВОДЯЩИХ
ТОНКИХ ПЛЕНОК

ОТДЕЛ НОВЫХ МЕТОДОВ УСКОРЕНИЯ

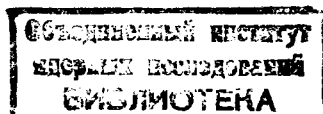
1972

P8 - 6855

Н.И.Балалыкин, Ю.В.Муратов, Н.Б.Рубин

УСТАНОВКА
ДЛЯ НАНЕСЕНИЯ СВЕРХПРОВОДЯЩИХ
ТОНКИХ ПЛЕНОК

Направлено в ЦТЭ



При создании коллективного линейного ускорителя^{/1/} с использованием сверхпроводящих /СП/ ускоряющих элементов - резонаторов одной из основных технических проблем является получение необходимой СП-поверхности.

Описываемая ниже установка имеет целевое назначение - получение СП двухкомпонентной $NbTi$ пленки на рабочей поверхности резонаторов. Однако ее возможности гораздо шире. Она позволяет получать тонкие чистые пленки различных металлов и неметаллов. На установке были получены пленки Nb , Ti , Zr , Mo , U , $NbTi$, $NbZr$, Ta , Sn , Ag , Al , Cr , керамики. Материал подложки - металлы, стекло, органическое стекло, эпоксидная смола, кинопленка, лавсановая пленка. Очевидно, круг исходных материалов, их композиций и материалов подложки может быть при необходимости значительно расширен. Широкие перспективы тонкопленочная технология открывает возможностью регулирования химсостава пленки как по глубине, так и по площади.

Получение СП-пленок с включением неметаллов /имитация пустот/ позволит дать ответ на некоторые вопросы теоретического характера.

Описание установки

Установка состоит из вакуумной камеры, системы откачки, блока питания, электроннолучевого плазменного испарителя, пульта управления. Общий вид установки представлен на рис. 1.

Вакуумная камера выполнена из нержавеющей стали. Корпус, стенка, крышка, откачной патрубков и район испарителя охлаждаются проточной водой. Уплотнение крышки, иллюминатора, фланцев испарителя и откачного патрубка - вакуумная резина. Электроводы

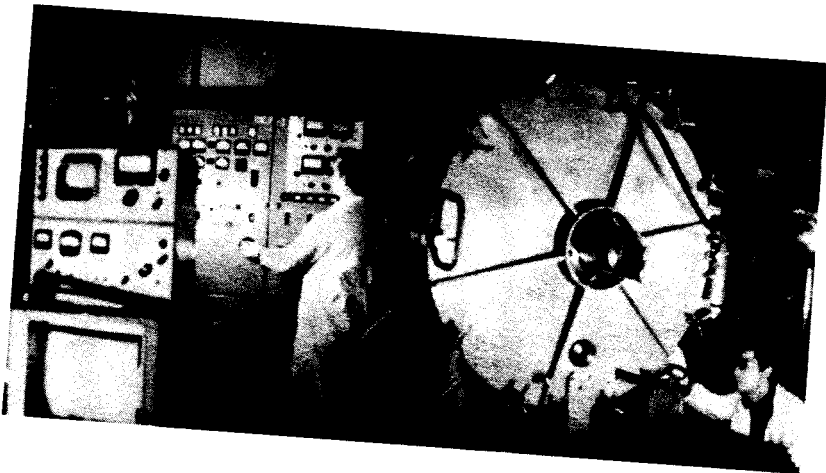


Рис. 1. Общий вид установки.

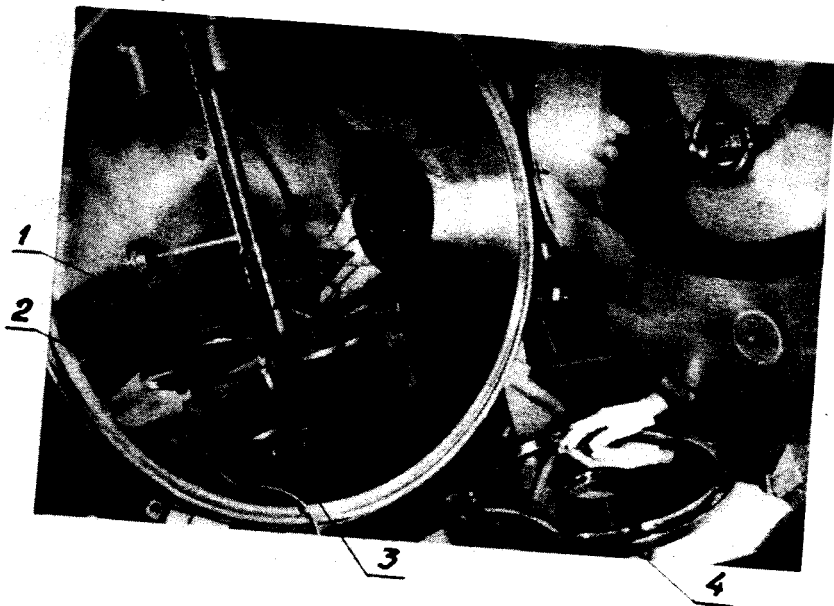


Рис. 2. 1 - планшайба, 2 - азотный экран, 3 - блок испарителей, 4 - половинка резонатора с напыленной ниобий-титановой пленкой.

и валы вращения планшайбы имеют комбинированное резино-фторопластовое уплотнение. Все остальные уплотнения - металл.

Внутри камеры /рис. 2/ расположены: планшайба из нержавеющей стали, служащая для закрепления и вращения изделия /резонатора/ в вертикальной или горизонтальной плоскости; азотный экран; ХК-термопары для контроля температуры подложки; кварцевый датчик контроля скорости нанесения пленки; четырехпозиционный электроннолучевой плазменный испаритель.

Система откачки включает в себя форвакуумную магистраль, форвакуумный насос ВН-4, вакуумный агрегат ВА-5-4 с заливной азотной ловушкой и азотный экран.

Блок питания состоит из регулируемых высоковольтных / $0 \div 10$ кв, $0 \div 5a$ / и низковольтных / $0 \div 50a$, 12 в/ источников постоянного тока для автономного питания электроннолучевых пушек испарителя. Отдельный регулируемый высоковольтный источник / $0 \div 20$ кв/ постоянного тока служит для подачи отрицательного потенциала на изделие.

Высоковольтные источники питания пушек изготовлены на базе трансформаторов типа ТМ - 50/10. Выпрямители выполнены по схеме Ларионова на диодах типа Д-248 и встроены в баки трансформаторов. Регулировка напряжения осуществляется по первичной обмотке тиристорами ВКДУ-150, включенными по встречно-параллельной схеме. Отрицательный полюс источников заземлен. С целью стабилизации режимов при переходе электроннолучевого процесса в электроннолучевой плазменный в цепь питания введена индуктивность. Работа испарителей описана ниже.

В пульте управления установки смонтированы коммутирующая аппаратура, кнопки управления, сигнализация, измерительный и блокировочный вакууметры.

Контроль парциальных давлений остаточных газов в камере осуществляется с помощью измерителя типа ИПДО-2.

Конструкция и работа электроннолучевого плазменного испарителя

Особенности конструкции испарителя обусловлены, во-первых, физико-химическими свойствами исходных материалов, во-вторых, технологическими требованиями процесса получения пленки на интересующей подложке.

Существует целый ряд чистых элементов и различных сплавов, обладающих свойством СП при определенных температурах. Среди этого широкого круга материалов важное практическое значение в настоящее время имеет чистый ниобий и его сплавы с титаном, цирконием и оловом. В качестве исходного материала при разработке электроннолучевой пушки испарителя был выбран ниобий.

Несмотря на то, что в ряде тугоплавких металлов / W , Mo , Re , Ta , Nb / ниобий занимает последнее место по величине температуры плавления / $T_{пл.} \approx 2500^\circ C$ /, испарение его сопряжено с большими затратами удельной мощности, чем для других указанных металлов. По данным /2, 3/, сравнение скорости испарения ниобия с вольфрамом и молибденом показывает, что ниобий испаряется в $150 \div 200$ раз медленнее.

Ниобий характеризуется значительной химической активностью. В отличие от молибдена и вольфрама ниобий взаимодействует с водородом уже при температуре $300^\circ C$ /4/ и становится весьма хрупким.

В присутствии окиси углерода при температуре выше $600^\circ C$ /4/ происходит образование карбида ниобия.

Окисляться ниобий начинает при сравнительно низких температурах - от $200^\circ C$ до $500^\circ C$ по различным литературным данным /2, 3, 4, 5/. При давлении кислорода около 10^{-3} тор на поверхности плотно сцепленного окисла NbO_2 образуется пористый окисел Nb_2O_5 и наблюдается линейная зависимость окисления от времени

Естественно поэтому, что процесс получения пленок ниобия, а равно и $NbTi$, $NbZr$, Nb_3Sn не следует вести при давлении выше 10^{-6} тор.

Разработанный испаритель позволяет вести процесс при давлении в камере не хуже 5×10^{-7} тор и интенсивно испарять не только ниобий, но и другие как более, так и менее тугоплавкие материалы.

Электроннолучевая короткофокусная катушка испарителя обеспечивает:

- 1/ плотность энергии не ниже $0,5 \times 10^5$ вт/см²;
- 2/ фокусное расстояние не более 13 мм;
- 3/ вывод ионов и нейтральных атомов испаряемого материала в рабочий объем камеры.

Схема пушки представлена на рис. 3.

В связи с отсутствием данных для непосредственного расчета таких систем рассчитывалась пушка со сходящимся потоком,

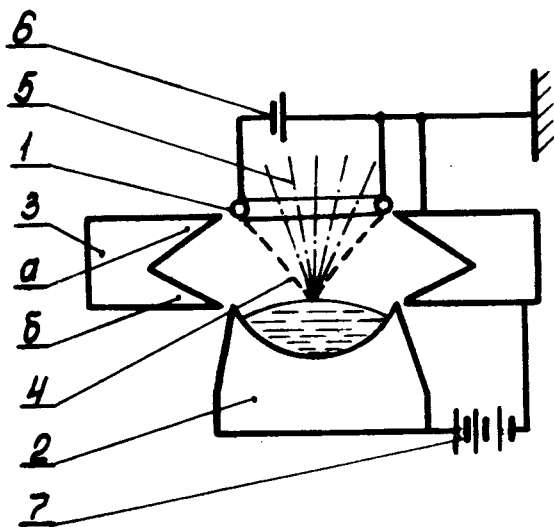


Рис. 3. Схема электроннолучевой пушки испарителя. 1 - кольцевой катод, 2 - анод-тигель, 3 - электростатическая линза: а - фокусирующая часть, б - концентрирующая часть, 4 - поток электронов, 5 - поток ионов и нейтральных атомов испаряемого материала, 6 - источник питания накала катода, 7 - высоковольтный источник.

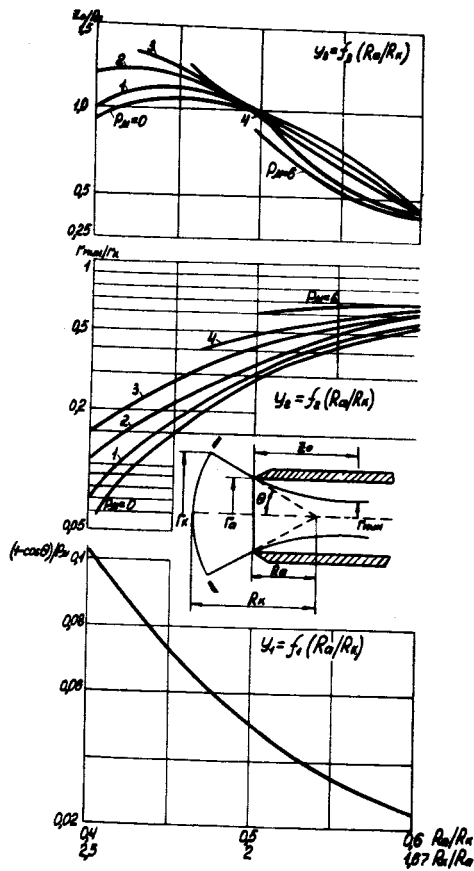


Рис. 4. Сводный график для определения параметров электроннолучевой пушки.

имеющая сплошной катод и основанная на использовании части сферического диода. Затем следовала экспериментальная проверка и доработка конструкции пушки.

Расчет производился по методу Мюллера^{/6/}, позволяющему приближенно определить геометрические размеры электродов пушки с первеансом до 6 /правда, с весьма умеренной компрессией/ и углом сходимости потока до 40° , что существенно расширяет расчетные возможности.

Сводный график для определения параметров пушки представлен на рис. 4.

Обозначения: R_k - радиус кривизны катода; R_a - радиус кривизны анода; r_k - радиус катода в плане; r_a - радиус анодного отверстия; θ - угол сходимости потока; z_0 - фокусное расстояние; Z_{min} - радиус кривоверта.

Зададимся: $P_\mu = 2$; радиус катода $r_k = 11$ мм; линейная компрессия $\frac{r_{min}}{r_{max}} = 0,1$. По среднему графику найдем, что пушка должна иметь отношение $\frac{R_a}{R_k} \approx 0,43$, а по нижнему, что:

$$\frac{1 - \cos \theta}{P_\mu} \approx 0,93 ;$$

отсюда:

$$1 - \cos \theta = 0,2 ; \quad \theta = 37^\circ ;$$

$$R_k = \frac{r_k}{\sin \theta} ; \quad R_k = 18,4 \text{ мм} ;$$

$$R_a = R_k \times 0,43 ; \quad R_a = 7,9 \text{ мм} ;$$

$$r_a = R_a \times \sin \theta ; \quad r_a = 4,8 \text{ мм} .$$

Учитывая, что под действием тепловых скоростей электронов радиус пучка в районе анода получается больше расчетного, а также еще и то, что рассеивающее действие анодного отверстия сказывается уже в пространстве перед анодом^{/9/}, вводим поправку на R_a по формуле:

$$R'_a = \frac{R_a}{\cos \theta} ;$$

$$R'_a \approx 10 \text{ мм};$$

$$r'_a = R'_a \cdot \sin \theta;$$

$$r'_a \approx 5,7 \text{ мм}.$$

Фокусное расстояние z_0 определяется по верхнему графику.

$$\frac{z_0}{R_k} = 1,25; \quad z_0 = 23 \text{ мм}.$$

Установочное расстояние между анодом и фокусирующей катодной линзой определяется выражением:

$$z = \frac{r_k}{\operatorname{tg} \theta} - \frac{r_a}{\operatorname{tg} \theta};$$

$$z = 7,5 \text{ мм}.$$

При выборе размеров и конфигурации реальных электродов для экспериментальной проверки пушки учитывалось следующее:

- 1/ отсутствие центральной части катода;
- 2/ влияние ионной фокусировки;
- 3/ влияние концентрирующей части электростатической линзы.

По данным [7] при исследовании влияния ионного пятна на формирование пучка удаление из катода вблизи его центра части оксида в виде круга, площадь которого составляла 7% от общей эмитирующей поверхности катода, привело к резкому изменению поперечных скоростей электронов. Значительная часть последних устремилась к оси под большими углами, создав вблизи оси пик плотности тока.

В случае использования кольцевого катода этот эффект еще более усиливается, так как удаляется не 7% активной части катода, а его значительная часть - 70÷80%.

Усилению фокусировки электронного потока способствует и особенность работы пушки - испарение и ионизация исходного материала. Положительный ионный шнур удерживает значительное число электронов, что проявляется в появлении максимума плотности тока вблизи геометрической оси пушки.

Определенное влияние на формирование электронного потока оказывает концентрирующая часть электростатической линзы /36 на рис. 3/.

Параллельно экспериментальной доводке электроннолучевой пушки был произведен расчет распределения потенциалов в области электростатической линзы на ЭВМ. Результаты расчета приведены на рис. 5. Ход кривых в районе концентрирующей части линзы говорит о влиянии последней на сходимость электронного потока.

Кроме того, концентрирующая часть электростатической линзы необходима по технологическим соображениям - она предохраняет от запыления вводной изолятор анода. В противном случае шунтирование изолятора наносимой в процессе работы металлической пленкой приводит к прекращению нормальной работы электронно-лучевой пушки.

Принимая во внимание фокусирующее действие описанных факторов, экспериментальный анод изготовили с $r_a = 8$ мм, а не $r'_a = 5,7$ мм по расчету и длиной $l = 11$ мм, а не $z_0 = 23$ мм по расчетному положению фокуса /рис. 46/. Взаимное расположение катода и анода, геометрия фокусирующей части электростатической линзы соответствовали расчетным. Схема экспериментальной пушки представлена на рис. 6.

Величина a отсчитывалась от верхней плоскости анода. В процессе эксперимента менялась величина разгоняющего напряжения, приложенного между катодом и анодом, и положение мишени в аноде по оси z .

Ток пушки определялся накалом катода и поддерживался во всех случаях равным 125 ма.

Результаты эксперимента приведены в таблице.

Как следует из таблицы /строка 14/, при $U = 5$ кв и $a = 5$ мм обеспечивается плотность энергии $0,5 \times 10^5$ вт/см².

Проверочный эксперимент с ниобиевой мишенью показал возможность расплавления ее при $U = 5$ кв и $I = 200$ ма.

В реальных условиях анод-тигель пушки изготовлен из меди и охлаждается водой. Компенсация отвода мощности водой достигается применением катода более сложной формы. Так, при испарении ниобия используется катод в форме двойного, либо тройного кольца.

Процесс электроннолучевого плазменного испарения происходит следующим образом.

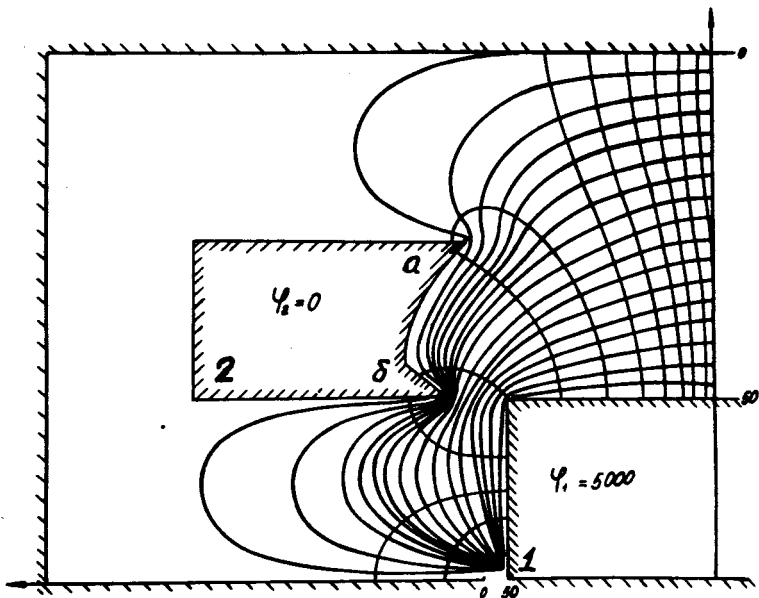


Рис. 5. Распределение потенциалов в области электростатической линзы. 1 - анод, 2 - электростатическая линза: а - фокусирующая часть, б - концентрирующая часть.

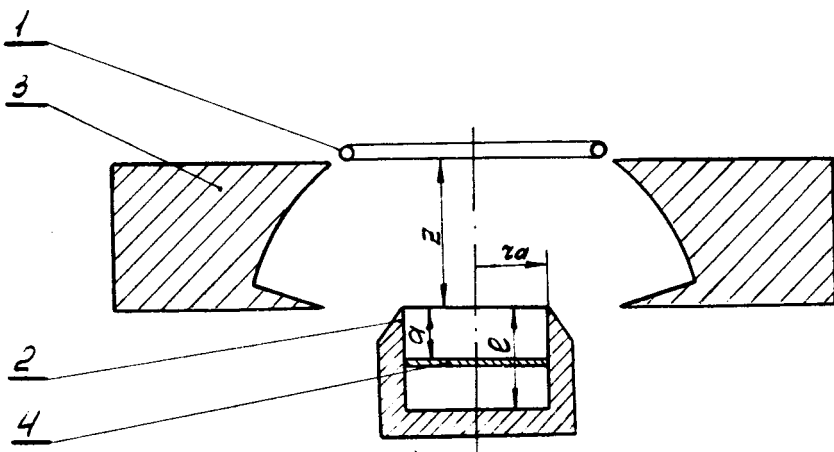


Рис. 6. Схема экспериментальной пушки. 1 - катод, 2 - анод, 3 - электростатическая линза, 4 - мишень /медный диск толщиной 0,5 мм/, а - установочный размер положения мишени в аноде.

№№ п/п	Разгоняющее напряжение, U , кв	Положение мишени, a , мм	Диаметр фокуса, мм	Удельная мощность ρ , вт/см ²
1	2,5	10	16	$0,2 \cdot 10^3$
2		5	7	$0,8 \cdot 10^3$
3		2	10	$0,4 \cdot 10^3$
4	3	10	14	$0,3 \cdot 10^3$
5		5	5	$0,2 \cdot 10^4$
6		2	7	$0,8 \cdot 10^3$
7	4	10	12	$0,4 \cdot 10^3$
8		5	3,5	$0,5 \cdot 10^4$
9		2	6	$0,2 \cdot 10^4$
10	4,5	10	10	$0,7 \cdot 10^3$
11		5	2	$0,3 \cdot 10^5$
12		2	3,5	$0,5 \cdot 10^4$
13	5	10	9	$1,0 \cdot 10^3$
14		5	1,5	$0,5 \cdot 10^5$
15		2	2,5	$1,0 \cdot 10^4$

В первоначальный момент /см. рис. 3/ исходный материал, помещенный в анод-тигель, расплавляется электронной бомбардировкой. Увеличение энергии луча вызывает испарение материала. При достижении определенной плотности пара и его частичной ионизации в результате нейтрализации объемного заряда у катода возникает несамостоятельный разряд в парах материала /8/. Этот переход характеризуется резким увеличением тока, снижением напряжения и появлением свечения, характерного для каждого материала.

При дальнейшем увеличении разгоняющего напряжения бомбардировка катода ионами испаряемого материала становится настолько значительной, что отпадает необходимость в использовании специального источника для накала катода. Характер работы катода изменяется с термоэмиссионного на вторичный ионно-электронный, а разряд переходит в самостоятельный. При этом значительно возрастает ионизация испаряемого материала и производительность процесса, что способствует получению более чистых по химическому составу пленок и улучшению адгезии последних с подложкой.

Следует отметить, что описанный самостоятельный разряд управляем. Управляющим фактором является разгоняющее напряжение.

Технологический процесс

Технология получения тонких пленок на установке складывается из следующих этапов:

- 1/ откачка камеры до давления не хуже 5×10^{-7} тор;
- 2/ напуск нейтрального газа (*Ar, He*) и чистка камеры тлеющим разрядом при давлении $10^{-1} \div 10^{-2}$ тор; $j = 5 \div 10$ ма/см²;
- 3/ чистка подложки /рабочая поверхность резонатора, образца и т.п./ тлеющим разрядом в среде нейтрального газа при давлении $10^{-1} \div 10^{-2}$ тор; $j = 5 \div 10$ ма/см²;
- 4/ прогрев и обезгаживание исходного материала;
- 5/ выход на рабочий режим и нанесение пленки;
- 6/ выдержка под вакуумом не хуже 5×10^{-7} тор в течение $5 \div 8$ час;
- 7/ напуск нейтрального газа и развакуумирование камеры.

По описанному технологическому процессу на установке было произведено нанесение двухкомпонентной СП пленки *Nb Ti* на рабо-

чую поверхность резонаторов /половинка резонатора с нанесенной пленкой хорошо видна на переднем плане рис. 2/, большое количество СП образцов Nb , $NbTi$, $NbZr$, Nb_3Sn , пленочные мишени из титана, ванадия, урана для различных физических экспериментов и выполнены другие работы по получению тонких пленок металлов с различной степенью оптической плотности.

Литература

1. В.И.Векслер и др. АЭ, 24, 317 /1968/.
2. А.Н.Несмеянов. Давление пара химических элементов. АН СССР, 1961.
3. R.Spieser. J.Electrochem.Soc., 1959, v. 106, p. 52.
4. Г.В.Самсонов, В.И.Константинов. Тантал и ниобий. Metallurg-издат, 1959.
5. Металловедение реакторных материалов. Госатомиздат 1962.
6. M.Muller. Journ. Brit. IRE, 1956, v. 16, p. 83-94.
7. C.C.Cutler et al., Proc. IRE, 1955, v. 43, No. 3, p. 299-306.
8. М.Н.Никишин, Г.Н.Клебанов, И.Х.Шоршоров, Н.Н.Рыкалин. Способ электроннолучевого напыления. Авторское свидетельство СССР № 213553, декабрь 1967.
9. И.В.Алямовский. Электронные пучки и электронные пушки. Москва, 1966.

Рукопись поступила в издательский отдел
22 декабря 1972 года.