

ЗАХВАТ И УДЕРЖАНИЕ ДЕЙТЕРИЯ В СООСАЖДЁННЫХ ВОЛЬФРАМ-ДЕЙТЕРИЕВЫХ ПЛЁНКАХ

С. В. Серушкин¹, В. М. Шаранов²

¹МГТУ им. Н. Э. Баумана, Москва

²ИФХЭ им. А. Н. Фрумкина РАН, Москва
ssv1988@mail.ru

Приводятся результаты экспериментального исследования формирования соосаждённых вольфрам-дейтериевых плёнок на кремниевых подложках при распылении вольфрамовых мишеней дейтериевой плазмой магнетронного разряда. Показано, что количество захваченного в плёнки дейтерия зависит от давления дейтерия в вакуумной камере, а также от расстояния между мишенью и подложкой, и на порядок величины превышает равновесную растворимость изотопов водорода в вольфраме.

Полученные данные подтверждают предположение, что захваченный в плёнках дейтерий локализован в объёмных порах и поверхностных блистерах, образующихся в процессе роста плёнок. Количественный анализ содержания дейтерия в полученных образцах позволяет предположить, что накопление изотопов водорода в соосаждённых плёнках в основном определяется быстрыми атомами дейтерия, отраженными от вольфрамовой мишени магнетрона.

Введение

Одной из важных проблем в термоядерном материаловедении остаётся проблема накопления изотопов водорода в плёнках, осаждаемых на различные компоненты разрядных камер термоядерных установок в результате взаимодействия дейтерий-третиевой плазмы с плазмообращёнными материалами. В качестве наиболее вероятных плазмообращённых материалов ИТЭР в настоящее время рассматриваются вольфрам и углерод как материалы дивертора и бериллий как облицовочный материал камеры.

В наших предыдущих публикациях [1, 2] были приведены результаты исследования формирования соосаждённых вольфрам-дейтериевых плёнок при распылении вольфрамовых мишеней дейтериевой плазмой магнетронного разряда. В качестве материала подложки для удобства последующего анализа образцов методами обратного резерфордского рассеяния и детектирования ядер отдачи был выбран кремний [2]. Показано, что относительное содержание захваченного в вольфрамовых плёнках дейтерия D/W изменяется в диапазоне от 0,14 до 0,37 в зависимости от расстояния между мишенью и подложкой, что на порядок величины превышает равновесную растворимость изото-

пов водорода в вольфраме. Предполагается, что захваченный в плёнках дейтерий локализован в объёмных порах и поверхностных блистерах, образующихся в процессе роста плёнок, что и определяет их структуру. В качестве примера на рис. 1 приведено изображение поверхности плёнки, полученное с помощью сканирующего электронного микроскопа. Там наблюдается множество округлых вздутий, которые, как было предположено в [1, 2], являются либо поверхностными блистерами, либо невскрывшимися порами. Микроанализ чёрных участков показал, что это кремний, т. е. это участки вскрывшихся пор, проходящих сквозь всю толщину плёнки.

Особенностью накопления дейтерия в соосаждённых плёнках является то, что его захват происходит в процессе роста плёнки за счёт одновременного осаждения на подложку распылённых атомов вольфрама вместе с атомами дейтерия. Поэтому процессы, приводящие к накоплению дейтерия и определяющие его количество и распределение по толщине растущей плёнки, отличаются от процессов захвата изотопов водорода в уже готовые вольфрамовые мишени при их облучении ионными пучками. Кроме того, неоднозначное влияние на эти процессы оказывает давления плазмообразующего газа (дейтерия), напускаемого в вакуумную камеру для горения магнетронного разряда. Данная работа посвящена изучению этих вопросов.

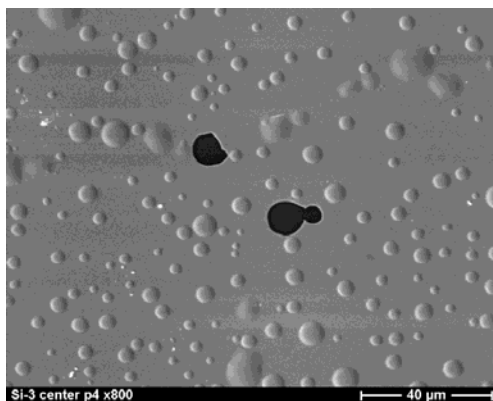


Рис. 1. Микрофотография поверхности вольфрамовой пленки, полученной при расстоянии между W-мишенью и Si-подложкой 80 мм

Экспериментальная часть

Были проведены эксперименты по осаждению на кремниевые подложки вольфрамовых плёнок при различных давлениях плазмообразующего газа дейтерия в вакуумной камере: 2, 5 и 8 Па. Расстояние между мишенью и подложкой во всех трёх случаях было одинаковым и равным 120 мм. Температура подложек контролировалась термопарой и во всех экспериментах на протяжении большей части времени напыления составляла примерно 500 К. Известно, что во время осаждения пленок на поверхность подложки падают как тепловые атомы дейтерия, количество которых зависит от давления в камере, так и быстрые атомы, отражённые от мишени магнетрона и летящие на подложку. Их поток определяется коэффициентом отражения атомов дейтерия от вольф-

рама Y_b , который по результатам расчетов в пакете SRIM [3], при использованных в экспериментах параметрах магнетронного разряда, примерно равен 0,5. Условия экспериментов и значения потоков быстрых отраженных атомов дейтерия приведены в табл. 1.

Таблица 1

Условия экспериментов

Давление, Па	Ток разряда, А/см^2 (ион· см^{-2} · с^{-1})	Напряжение разряда, В	Время осаждения пленки, с	Поток атомов D, отраженных от мишени, $\text{ат}\cdot\text{см}^{-2}\cdot\text{с}^{-1}$
2	0,08 ($5,0\cdot 10^{17}$)	530	$28,8\cdot 10^3$	$2,5\cdot 10^{17}$
5	0,24 ($1,5\cdot 10^{18}$)	530	$21,6\cdot 10^3$	$7,5\cdot 10^{17}$
8	0,20 ($1,25\cdot 10^{18}$)	530	$22,8\cdot 10^3$	$6,25\cdot 10^{17}$

Для определения содержания дейтерия в полученных пленках использовался метод детектирования ядер отдачи (elastic recoil detection analysis, ERD) [4]. Эта часть работы была выполнена в лаборатории взаимодействия ионов с веществом НИИЯФ им. Д. В. Скобельцына МГУ им. М. В. Ломоносова. На рис. 2 представлена схема геометрии метода. Угол падения пучка ионов He на образцы составлял $\alpha = 72,5^\circ$, а детектор регистрировал энергию выбитых легких частиц (H, D) под углом $\theta = 35^\circ$. Пример энергетического спектра ядер отдачи на ионах He с энергией 1,5 МэВ для образца, полученного при давлении дейтерия 8 Па, представлен на рис. 3. Наличие в спектре отчетливого пика, соответствующего протию H, объясняется присутствием влаги и других сторонних загрязнений в вакуумной камере ускорителя при проведении ERD исследований.

Из спектров ERD были определены профили распределения захваченного дейтерия по толщине плёнок, один из которых (для давления дейтерия 8 Па) показан на рис. 4. Толщина плёнки указана на верхней шкале рисунка.

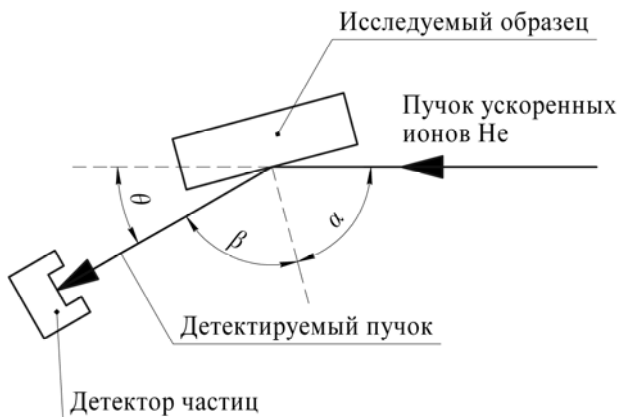


Рис. 2. Общая геометрия ядерных методов определения состава тонких пленок

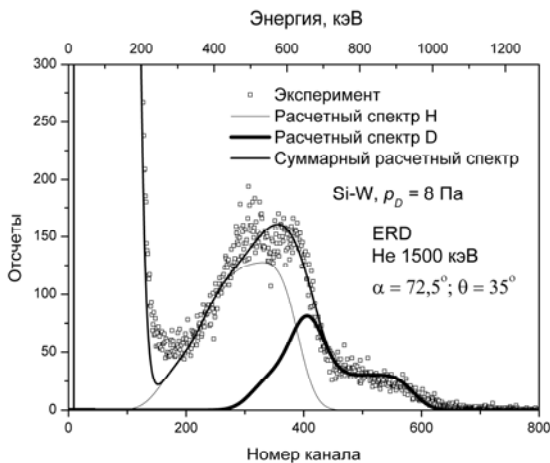


Рис. 3. Энергетический спектр образца, полученный методом ядер отдачи на ионах He ($p_D = 8$ Па)

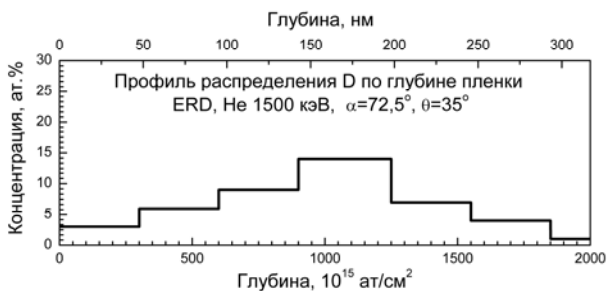


Рис. 4. Распределение дейтерия по глубине плёнки, полученной при давлении 8 Па

Результаты и обсуждение

Высокая концентрация дейтерия наблюдается по всей толщине плёнки. Но её максимальная величина наблюдается в центре образца со спадом на внешней и внутренней (на границе с подложкой) поверхностях. Такой характер распределения подтверждает ранее выдвинутое предположение [1, 2], что захваченный дейтерий находится в пузырьках и порах, которые зарождаются и растут на разной глубине плёнки во время её формирования. Уменьшение концентрации дейтерия на границах плёнки, предположительно, можно объяснить тем, что часть пузырьков, находящихся вблизи обеих поверхностей, вскрывается с выделением находящегося в них дейтерия, что приводит к уменьшению концентрации в этих областях. В работе [5] сообщается о результате, отчасти похожем на данный. В W-слоях, осаждённых при магнетронном распылении в дейтериевой плазме, газ был практически однородно распределён по всей толщине плёнки. Но концентрация дейтерия уменьшалась более чем на два порядка на границе раздела между W-слоем и промежуточным медным слоем, напылённым на кремниевую подложку.

С помощью ERD-анализа было определено также общее количество захваченного в плёнках дейтерия при разных давлениях. Эти данные приведены в табл. 2.

Таблица 2

Количество дейтерия в пленках, осажденных при различных давлениях

Давление в камере, Па	Количество захваченного дейтерия, ат./см ²
2	$28 \cdot 10^{16}$
5	$1,5 \cdot 10^{16}$
8	$1,4 \cdot 10^{16}$

Видно, что с ростом давления дейтерия в вакуумной камере количество захваченного в пленках дейтерия уменьшается. При давлении 5 и 8 Па эта величина почти в 20 раз меньше, чем при 2 Па, хотя растворимость водорода в вольфраме пропорциональна \sqrt{p} , т. е. чем больше давление, тем больше должна была бы быть величина растворённого газа.

Это указывает на то, что давление плазмообразующего газа в камере напрямую не влияет на величину захваченного дейтерия. На первый взгляд этот результат не является неожиданным, так как доля захваченных тепловых атомов газа определяется их растворимостью в материале, а поскольку растворимость изотопов водорода в вольфраме очень низка [6], то и доля эта незначительна.

Но в случае растущей плёнки помимо механизма растворения надо учитывать и возможность захвата хемосорбированных на поверхности атомов дейтерия, которые, минуя стадию растворения, оказываются погребёнными под слоем осаждаемых атомов вольфрама, образуя вместе с быстрыми атомами дейтерия газонаполненные пузырьки. Сложно сказать, какая доля этих захваченных атомов определяется быстрыми атомами дейтерия, а какая – тепловыми. Можно сделать только косвенные оценки.

Частота столкновений тепловых атомов дейтерия с поверхностью плёнки намного превышает поток быстрых атомов. Действительно, число соударений ν тепловых атомов газа в единицу времени при давлении p с единичной поверхностью твёрдого тела может быть оценено, используя известное выражение [7]:

$$\nu = \frac{p}{\sqrt{2\pi m k T}} \quad (1)$$

где m – масса атома газа (для дейтерия $m = 3,34 \cdot 10^{-27}$ кг), $k = 1,38 \cdot 10^{-23}$ Дж/К, T (К) – температура (в наших экспериментах $T \approx 500$ К).

Для давлений 2, 5 и 8 Па значения ν получаются равными $1,7 \cdot 10^{19}$ ат/(см²·с), $4,2 \cdot 10^{19}$ ат/(см²·с) и $6,6 \cdot 10^{19}$ ат/(см²·с), соответственно. Эти величины на два порядка превышают поток быстрых атомов дейтерия, отраженных от мишени, который при наших условиях эксперимента (как было сказано выше)

равен $\sim 5 \cdot 10^{17}$ ат/(см²·с). И если бы величина захваченного дейтерия определялась тепловыми атомами, то при 2 Па она была бы меньше, чем при более высоком давлении.

Таким образом, можно сделать вывод, что именно быстрые атомы дейтерия определяют величину захваченного в вольфраме газа. Зависимость от давления в таком случае объясняется тем, что часть быстрых атомов по пути к подложке в результате столкновений с тепловыми атомами теряет энергию и рассеивается, не долетая до подложки. И чем больше давление, тем меньше доля тех атомов, которые достигают подложку и накапливаются в ней, что и приводит к уменьшению концентрации захваченного дейтерия.

Аналогичным образом можно объяснить уменьшение концентрации захваченного дейтерия при увеличении расстояния между мишенью и подложкой, что и наблюдалось в работе [2].

Выводы

В работе экспериментально изучены особенности захвата и удержания дейтерия в соосаждённых вольфрам-дейтериевых плёнках, формирующихся на кремниевых подложках в результате распыления вольфрамовых мишеней дейтериевой плазмой магнетронного разряда.

Высокая концентрация дейтерия, захваченного в образцах, наблюдается по всей толщине пленок и не может быть объяснена равновесной растворимостью изотопов водорода в вольфраме. Об этом свидетельствуют результаты, представленные в табл. 2. Процессы, приводящие к захвату дейтерия при формировании таких пленок, отличаются от процессов, определяющих накопление изотопов водорода в вольфрамовых мишенях при их облучении ионными пучками.

Давление газа в вакуумной камере, равно как и расстояние между мишенью магнетрона и подложкой, оказывает влияние на свойства и структуру соосаждённых плёнок. Показано, что количество захваченного в плёнках дейтерия определяется, в основном, потоком быстрых атомов дейтерия, отражённых от вольфрамовой мишени. Давление дейтерия в камере определяет интенсивность рассеяния этих атомов с потерей энергии на пути от мишени до подложки. Поэтому увеличение этого давления приводит к уменьшению количества дейтерия, захваченного в соосаждённых пленках.

Авторы выражают благодарность С. Е. Кривицкому и В. В. Затекину за помощь в проведении экспериментов и вычислений в данной работе.

Список литературы

1. Исследование взаимодействия дейтериевой плазмы с вольфрамовыми мишенями / Зимин А. М., Шарапов В. М., Кривицкий С. Е., Куликаускас В. С. // Наука и образование: электронное научно-техническое издание – 2013, № 12. – <http://technomag.bmstu.ru/doc/669439.html>. – DOI: 10.7463/1213.0669439.

2. Влияние дейтерия на формирование тонких пленок при распылении вольфрама в дейтериевой плазме магнетронного разряда / Шарапов В. М., Зи-

мин А. М., Кривицкий С. Е., Серушкин С. В., Залавутдинов Р. Х., Куликаускас В. С. // Поверхность (в печати).

3. Ziegler J. F., Biersack J. P., Littmark K. The Stopping and Range of Ions in Matter. - Pergamon Press. New York. 1985. – 321 p.

4. Фельдман Л., Майер Д. Основы анализа поверхности и тонких пленок: Пер. с англ. – М.: Мир, 1989. – 344 с.

5. Alimov V. Kh., Roth J., Shu W. M., Komarov D. A., Isobe K., Yamani-shi T. Deuterium trapping in tungsten deposition layers formed by deuterium plasma sputtering. J. Nucl. Mater. 399 (2010) 225–230.

6. Frauenfelder R. Solution and diffusion of hydrogen in tungsten. J. Vac. Sci. Technol. 6 (1969) 388–397.

7. Грошковский Я. Техника высокого вакуума. Мир, 1975.