БЕРИЛЛИЕВЫЕ СФЕРИЧЕСКИЕ ОБОЛОЧКИ ДЛЯ МИШЕНЕЙ ЛТС

А. С. Вихорев, В. М. Изгородин, Н. Н. Мариничева, И. А. Чугров, В. Л. Юрьев

ФГУП «РФЯЦ-ВНИИЭФ» ИЛФИ, г. Саров Нижегородской обл.

В настоящей работе приведены данные о получении полых сферических бериллиевых оболочек методом магнетронного распыления бериллиевой мишени в среде инертного газа (аргона). Рассматривается влияние подложки и различных технологических параметров экспериментальной напылительной установки, на морфологию поверхности и геометрические параметры получаемых бериллиевых оболочек. Представлены данные исследования морфологии поверхности и поперечного среза бериллиевых оболочек. Получены бериллиевые оболочки диаметром от 1,5 до 2,4 мм и толщиной стенки ~70 мкм.

В рамках исследования ЛТС на установках с энергией мегаджоульного уровня, применяются мишени непрямого облучения, состоящие из сферической оболочки, наполненной дейтерий-тритиевой смесью. В качестве материала оболочки применяются стекла, различные полимеры и бериллий [1–4]. И здесь стоит обратить особое внимание на бериллиевые оболочки, так как бериллий обладает рядом преимуществ перед другими материалами. Это связано с высокой прочностью, низким атомным номером ($Z_{Be} = 4$), низкой проницаемостью для изотопов водорода (вследствие высокой концентрации атомов) и некоторыми преимуществами, связанными с физикой сжатия [5, 6].

Таким образом, цель работы заключается в разработке и исследовании технологии получения бериллиевых оболочек используемых в качестве мишени для ЛТС, а также развитие методов исследования структуры, состава и морфологии поверхности оболочек.

Единственным реализуемым на сегодняшний день методом изготовления оболочек из бериллия, является вакуумное нанесение его на сферические полимерные подложки с последующим термическим удалением последних [7]. В качестве подложек использовались: полистирольные сферические оболочки диаметром 1,5–1,8 мм и толщиной стенки 10 мкм, полученные методом вспенивания исходных гранул полистирола в вертикальной печи падения и толстостенные (~30 мкм) полистирольные оболочки диаметром 2,3–2,4 мм полученные методом микрокапсулирования. Для решения поставленной задачи была спроектирована и изготовлена экспериментальная напылительная установка «КРАУДИОН». Установка оснащена магнетронным кластером с тремя независимо работающими конфокальными магнетронами (см. рис. 1). При напылении бериллия, сферические подложки из полистирола помещаются в непрерывно вибрирующую чашку, на которую подаются колебания (вдоль оси Z) различной частоты (от 0,01 до 10 Гц) и интенсивности. При этом оболочки поворачиваются к мишеням различными сторонами, и происходит равномерное нанесение бериллиевого слоя.

Порядок работы на напылительной установке был следующим. Сначала производилась загрузка партии оболочек в вакуумную камеру с последующей откачкой до высокого вакуума и напуском газа (аргона). Потом поднималась крышка закрывающая чашку с оболочками, магнетроны поворачивались в рабочее положение (сфокусированы на чашку) и проводили отпыление магнетронов на заслонки. Одновременно с отпылением запускали механизм подачи колебаний на чашку и проверяли левитацию оболочек. Далее начинали процесс нанесения бериллия и в зависимости от того на какие оболочки он наносился, выбирался соответствующий режим подобранный экспериментально. На каждом этапе работы с оболочками: выгрузка из контейнера, загрузка в чашку и установка в вакуумную камеру, выгрузка из камеры, визуально проверялась их целостность на микроскопе МБС-10. Если во время проверки обнаруживались оболочки с дефектами, то проводилась их отбраковка. Последним этапов было проведение мягкого напуска и выгрузка готовых оболочек.

Рис. 1. Магнетронный кластер, вибрирующая чашка и внешний вид напылительной установки

Учитывая, что к бериллиевой оболочке, как к мишени наполненной дейтерий-тритиевой смесью, предъявляются достаточно жесткие требования к качеству поверхности, толщине стенки и структуре, то нами использовались следующие методы исследования: оптическая интерферометрия; оптическая, атомно-силовая и рентгеновская микроскопия; определение толщины стенки бериллиевой оболочки гравиметрическим методом (табл. 1). Обработка изображений проводилась с применением программ GWYDDION 2.33.

Таблица 1

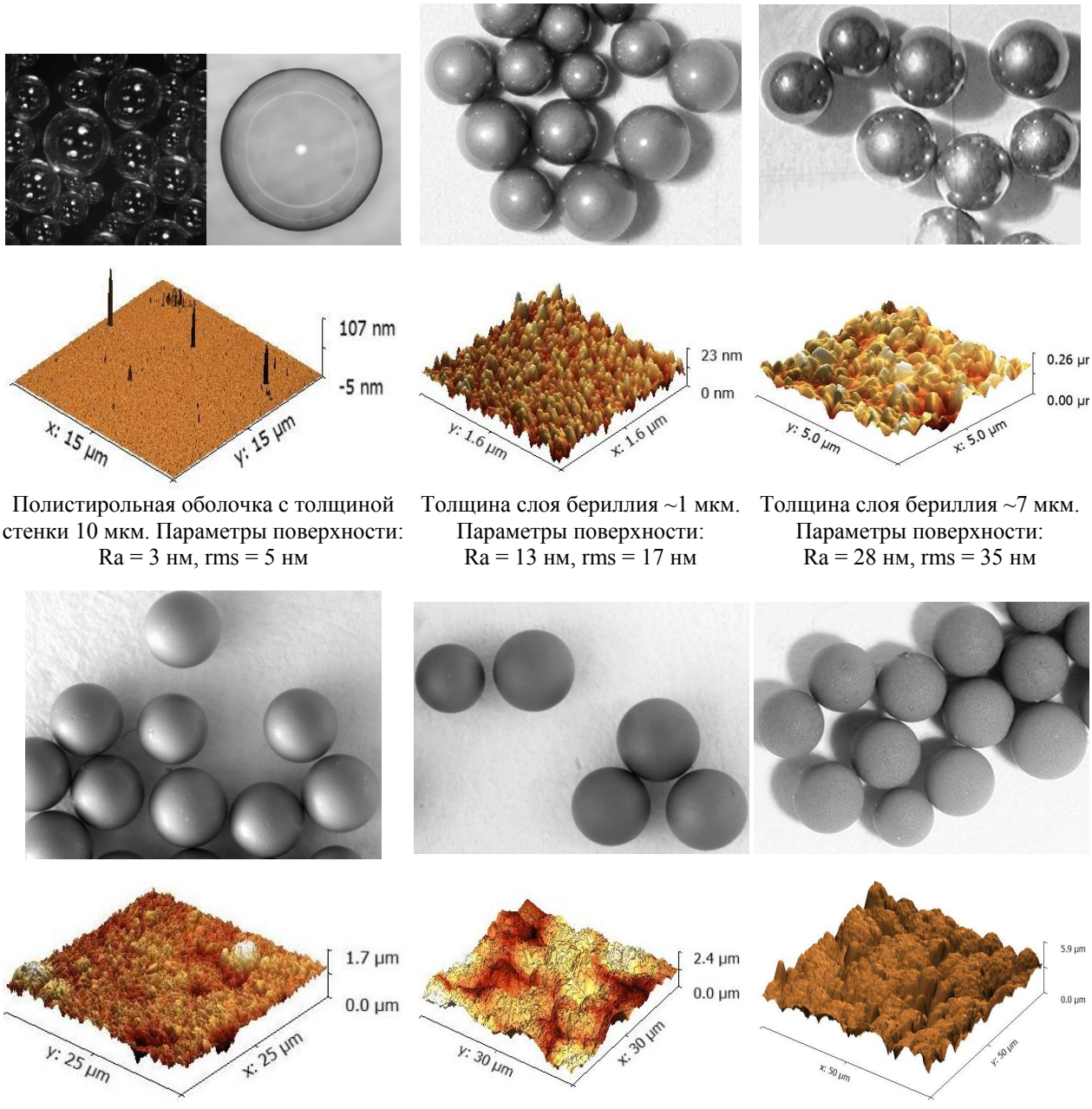
Данные измерений среднего диаметра, общей массы бериллиевых оболочек и расчет толщины слоя бериллия

Кол-во оболочек, шт.	Общая масса оболочек, мг	Средний диаметр, мм	Толщина слоя бериллия, мкм
24	6,470 ±0,025	1,593 ±0,005	16,02 ±0,4
23	10,950 ±0,025	1,597 ±0,005	30,89 ±0,4
20	11,260 ±0,025	1,635 ±0,005	35,39 ±0,4
19	13,475 ±0,025	1,653 ±0,005	44,75 ±0,4
15	16,765 ±0,025	1,708 ±0,005	69,41 ±0,4

В первую очередь необходимо было определиться с режимами нанесения бериллия на полистирольные подложки. Было ясно, что начальные слои бериллия необходимо получать при минимальной мощности, подаваемой на магнетроны, что связано с низкой прочностью и деградацией оболочек при температурной обработке. Первые эксперименты показали полное разрушение оболочек. Далее проводилась серия экспериментов по отработке режимов нанесения бериллия, результатом которых стало нахождение режима наибольшего выхода годных оболочек: когда напыление проводилось тремя магнетронами (мощность поднималась ступенчато от 10 до 100 Вт (шаг 10 Вт)) полученные оболочки были визуально целые и имели гладкую поверхность. Во время проведения экспериментов была обнаружена проблема, связанная с перегревом оболочек на начальном этапе нанесения, что выражалось в появлении скомканных оболочек, и оболочек с жеваной поверхностью. Решение данной проблемы заключалось в применении следующих мер: перед началом напыления подложки должны находиться под вакуумом (не менее 15 ч), с целью выравнивания давления внутри и снаружи оболочки; не нарушать общую схему проведения процесса напыления, плавно поднимать мощность и не прерывать процесс резко; по окончании процесса напыления в течение 20 мин подавать колебания на чашку с оболочками, для постепенного остывания оболочек и чашки. После получения нескольких партии тонкостенных (~3 мкм) бериллиевых оболочек каждая партия загружалась в установку, и проводили процесс наращивания толщины оболочек при большей пода-

ваемой мощности. Увеличение подаваемой мощности закономерно приводит к повышению скорости напыления покрытия. В итоге мощность подняли до 250 Вт, но вследствие большого выхода брака опустили до 200 Вт.

После каждой большой напылительной сессии бериллиевые оболочки взвешивались и фотографировались, для расчета толщины бериллиевого слоя, а также для исследования поверхности на атомно-силовом микроскопе и интерферометре белого света с целью получения данных о шероховатости и геометрических параметрах оболочек. На рис. 2 приведены фотографии партий бериллиевых оболочек и профили поверхности отдельных из них.



Полистирольная оболочка с толщиной стенки 10 мкм. Параметры поверхности: Ra = 3 нм, rms = 5 нм

Толщина слоя бериллия ~1 мкм. Параметры поверхности: Ra = 13 нм, rms = 17 нм

Толщина слоя бериллия ~7 мкм. Параметры поверхности: Ra = 28 нм, rms = 35 нм

Толщина слоя бериллия ~16,02 мкм. Параметры поверхности: Ra = 103 нм, rms = 144 нм

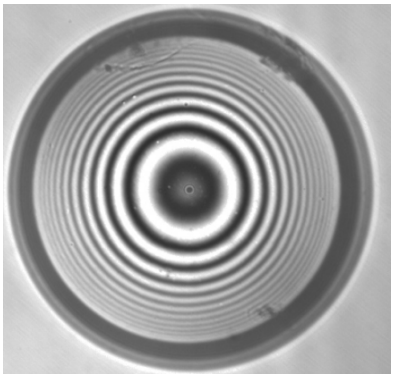
Толщина слоя бериллия ~30,89 мкм. Параметры поверхности: Ra = 298 нм, rms = 368 нм

Толщина слоя бериллия ~69,41 мкм. Параметры поверхности: Ra = 511 нм, rms = 683 нм

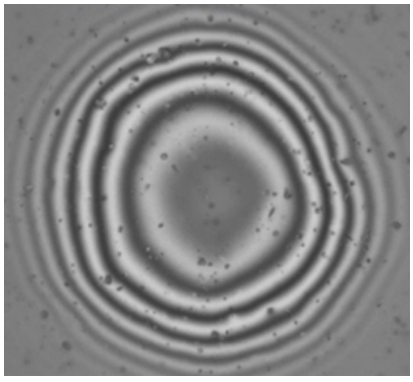
Рис. 2. Общий вид полученных бериллиевых оболочек и профили поверхности отдельных из них с разной толщиной бериллиевого слоя

Для сравнения первыми приведены фотография и профиль поверхности одной из полистирольных оболочек, используемой в качестве подложки. Для каждого профиля поверхности посчитаны средние параметры шероховатости (Ra и rms) при максимальной площади сканирования АСМ-зонда. Для наглядности представлены профили поверхности с разной площадью сканирования.

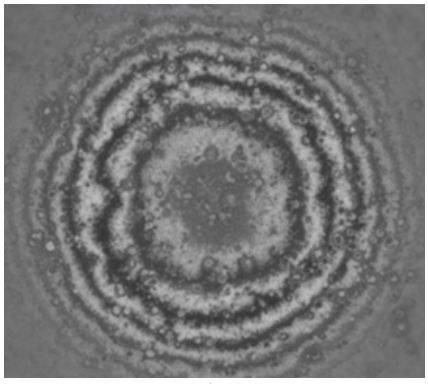
На рис. 3 представлены интерферограммы внешней и внутренней поверхности полученных оболочек с разной толщиной слоя бериллия, а также для сравнения первой, приведена интерферограмма оболочки, используемой в качестве подложки. Анализ поверхности и расчет средних параметров шероховатости (Ra и rms) проводился с помощью ПО интерферометра. Анализируемая площадь для внешней поверхности составляла 140×105 мкм^2 и 282×211 мкм^2 для внутренней.



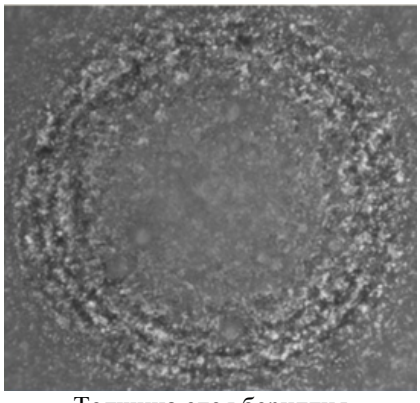
Полистирольная оболочка с толщиной стенки 10 мкм. Параметры внешней поверхности: Ra = 5 нм, rms = 8 нм



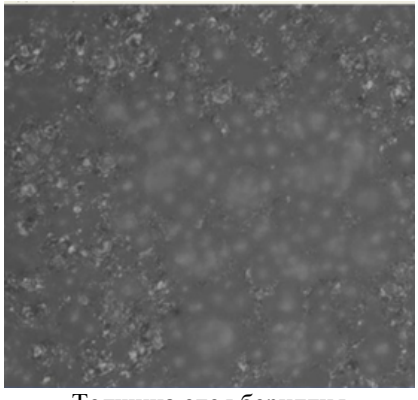
Толщина слоя бериллия ~1 мкм. Параметры внешней поверхности: Ra = 44 нм, rms = 67 нм



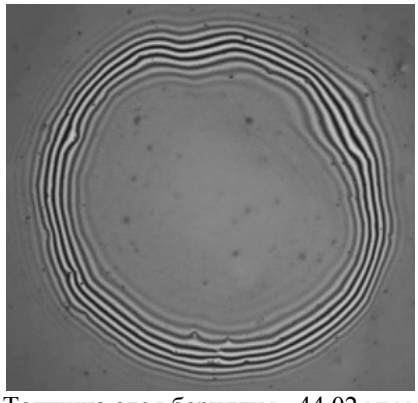
Толщина слоя бериллия ~7 мкм. Параметры внешней поверхности: Ra = 70 нм, rms = 130 нм



Толщина слоя бериллия ~16,02 мкм. Параметры внешней поверхности: Ra = 177 нм, rms = 263 нм



Толщина слоя бериллия ~69,41 мкм. Параметры внешней поверхности: Ra = 938 нм, rms = 1194 нм



Толщина слоя бериллия ~44,02 мкм. Параметры внутренней поверхности: Ra = 155 нм, rms = 197 нм

Рис. 3. Интерферограммы внешней и внутренней поверхности бериллиевых оболочек с разной толщиной слоя бериллия

Сначала обратим внимание на данные о геометрии и качестве поверхности полистирольной оболочки, используемой в качестве подложки. Во-первых, оболочка обладает близкой к сфере геометрией, что выражается в наличии на интерферограмме четкой и резкой интерференционной картины с хорошо определяемым центром и расходящимися от него концентрическими кольцами. Во-вторых, визуально оболочка оптически гладкая, прозрачная, без видимых дефектов. В-третьих, поверхность оболочки характеризуется низкими параметрами шероховатости, что подтверждается не только оптическими методами, но и атомно-силовой микроскопией. Значения Ra и rms не превышают 10 нм для обоих методов, что говорит о хорошем качестве поверхности. После нанесения слоя бериллия происходит ухудшение качества поверхности, что выражается в ухудшении интер-

ференционной картины (по мере увеличения толщины бериллиевого слоя происходит размытие, изгибание, нарушение интерференционных колец с полным их исчезновением для самой толстой оболочки) и нарастании отличия от сферической геометрии. Данные полученные из анализа интерферограмм и визуально осмотра подтверждаются изображениями поверхности полученных с помощью атомно-силового микроскопа. Теперь обратим внимание на последнюю интерферограмму, на которой представлена интреференционная картина внутренней поверхности одной из бериллиевых оболочек. Известно, что начальные слои растущей пленки повторяют морфологию поверхности подложки, на которой растет пленка. В нашем случае происходит именно это, что подтверждается четкой и резкой интрефернционной картиной, но при этом есть местные искажения интерференционных полос, говорящих о нарушении сферичности, и наличие мелких дефектов, что выражается в более высоких значениях параметров шероховатости по сравнению с таковыми у полистирольной подложки.

Рассмотрение структурно-морфологических свойств логичнее всего начать с анализа магнетронной мишени, с которой проводилось нанесение бериллиевого слоя на полистирольную подложку. Известно, что материал бериллий, плохо идентифицируется стандартными методиками ввиду малой плотности (1,848 г/см^3) и низкого атомного номера.

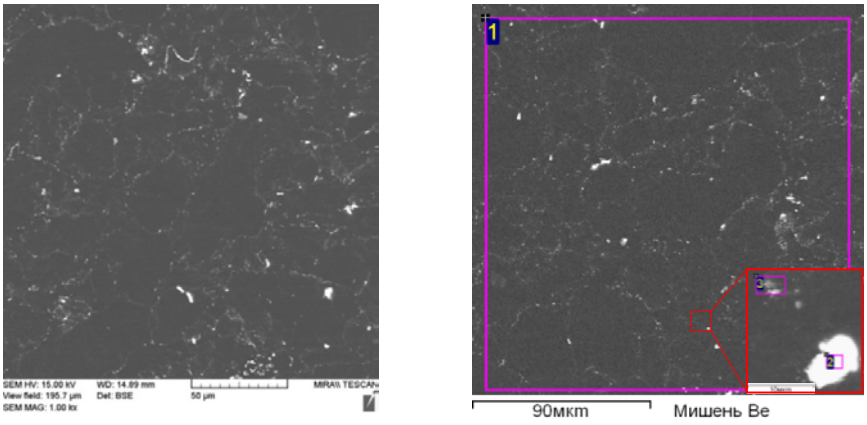


Рис. 4. Микроструктура поверхности бериллиевой мишени в атомном контрасте (слева) и участки элементного анализа поверхности (справа)

Но если в анализируемом образце мишени присутствуют примеси более тяжелых элементов, то возможно провести элементный анализ и отследить их след в получаемых бериллиевых оболочках. На рис. 4 представлены изображения поверхности магнетронной мишени снятые в атомном контрасте, видны локальные неоднородности, связанные с распределением примесей в матрице мишени в основном на границах раздела бериллиевых зерен (табл. 2). Латеральный размер зерен варьируется от 10 до 30 мкм, что характерно для металлического поликристаллического бериллия.

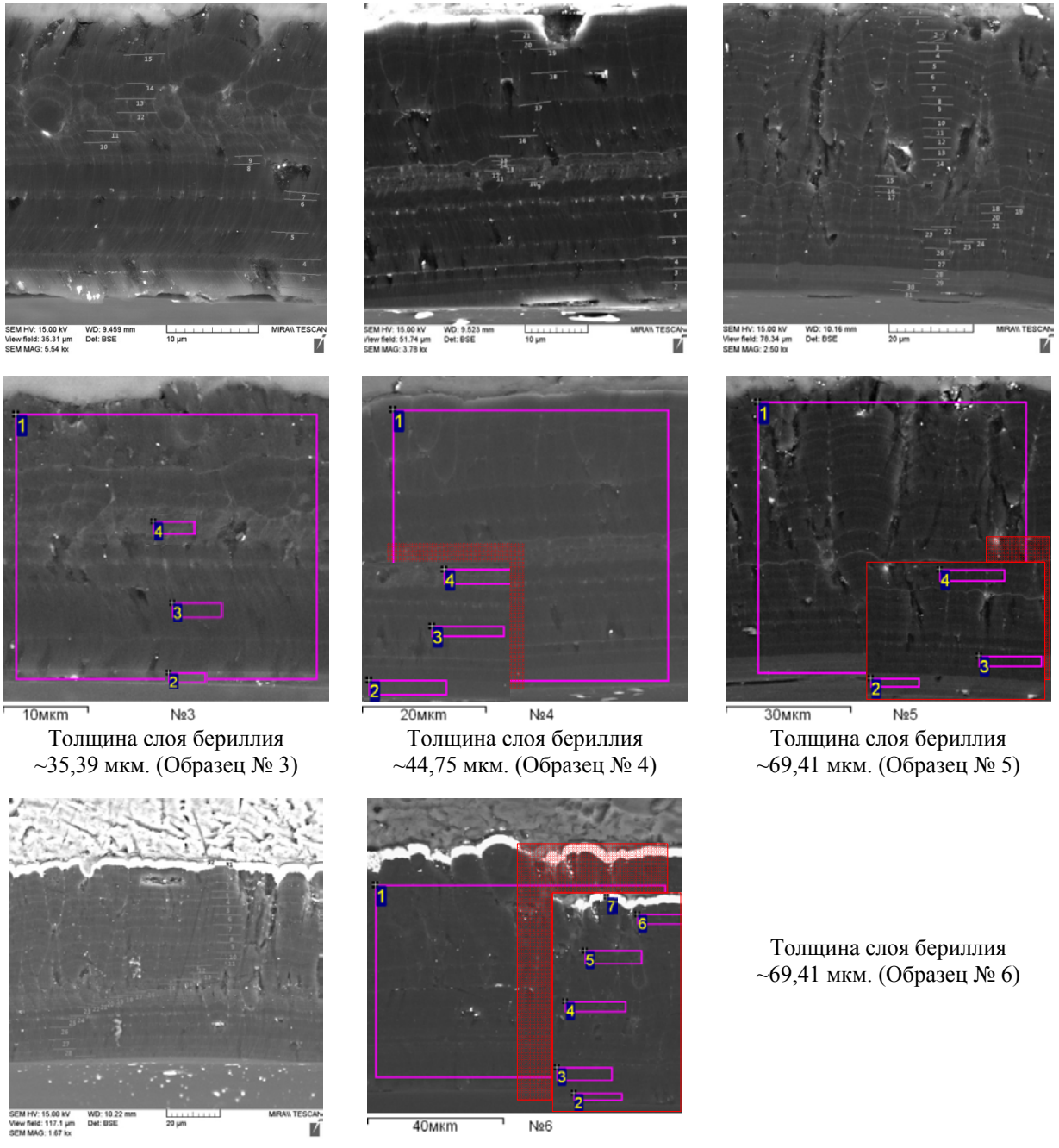
Таблица 2

Элементный состав примесей в мишени и образцах № 1, 2, 3, 4, 5, 6

Обозначение	Массовое содержание, %						
	O	Ar	Al*	Si*	Cr	Fe	W
Мишень	0,5	–	–	–	0,06	0,14	0,06
№ 1	1,9	0,06	0,04	0,13	0,05	0,2	0,04
№ 2	2,6	0,06	0,04	0,11	0,14	0,19	–
№ 3	2,4	0,05	0,04	0,07	0,05	0,2	–
№ 4	2,3	0,07	0,06	0,05	0,07	0,2	–
№ 5	2,5	0,07	0,05	0,09	0,12	0,2	–
№ 6	2,5	0,07	0,04	0,04	0,08	0,14	–

*Содержание Al и Si корректировалось на величину фона детектора.

На рис. 5 представлены изображения поверхности поперечного среза бериллиевых оболочек снятые в атомном контрасте и участки элементного анализа оболочек с разной толщиной стенки. Из полученных снимков видно, что для всех оболочек характерна слоистая и столбчато-зеренная структура. Видно, что начальные слои копируют морфологию поверхности подложки. Все это говорит о правильности выбора ступенчатого режима нанесения, по крайней мере, для формирования начальных слоев будущей оболочки. Далее с увеличением подаваемой мощности структура претерпевает изменения, заключающиеся в появлении на фоне предпочтительно слоистой структуры роста столбчато-зеренной компоненты. Слои образующие оболочку имеют, как правило, близкие составы. Анализ карт распределения элементов проводился со всей площади поперечного среза оболочки (участок анализа 1).



Толщина слоя бериллия ~35,39 мкм. (Образец № 3)

Толщина слоя бериллия ~44,75 мкм. (Образец № 4)

Толщина слоя бериллия ~69,41 мкм. (Образец № 5)

Толщина слоя бериллия ~69,41 мкм. (Образец № 6)

Рис. 5. Микроструктура поверхности поперечного среза оболочек в атомном контрасте (верхний ряд) и участки элементного анализа поверхности (нижний ряд)

Анализируя данные представленные в табл. 2 и изображения снятые в атомном контрасте, можно сделать следующие выводы: 1) в мишени кроме основного элемента бериллия (Be), присутствует определенный набор примесей более тяжелых элементов: кислород (O), хром (Cr), железо (Fe) и вольфрам (W); 2) набор примесей присутствующий в мишени почти полностью повторяется во всех образцах на неизменном уровне, за исключением кислорода (O), содержание которого достигает значений в 2,5 %; 3) повышенное содержание кислорода в оболочках можно объяснить незначительным окислением бериллия после окончания процесса напыления, что выражается в локализации кислорода преимущественно в межслойных границах; 4) появление аргона (Ar) на уровне менее 0,1 % в образцах и его отсутствие в распыляемой мишени, говорит о незначительном взаимодействии (внедрении) атомов аргона с материалом матрицы в процессе нанесения бериллия; 5) у всех образцов наблюдается повышенное содержание железа (Fe) в начальных слоях, по сравнению с образцом мишени, это можно объяснить незначительным распылением стального кольца, которое удерживает бериллиевую мишень в теле магнетрона.

Для каждого образца, по изображениям поперечного среза, были посчитаны общая толщина оболочки, толщина отдельных слоев (образец № 5), составляющих оболочку, и проведен расчет скорости напыления бериллия для всей оболочки (см. табл. 3). Для образца № 5 была проведена оценка не только средней скорости напыления для отдельного слоя, но и анализ зависимости скорости напыления от подаваемой мощности. Зависимость характеризуется закономерным увеличение скорости напыления при повышении мощности и принимает значения 0,20, 0,35, 0,45 и 0,58 мкм/ч при подаваемой мощности 100, 150, 200 и 250 Вт, соответственно.

Таблица 3

Данные измерений общей толщины и расчет средней скорости напыления слоя бериллия

Обозначение	Общая толщина слоя бериллия, мкм (расчет)	Общая толщина слоя бериллия, мкм	Средняя скорость напыления бериллия, мкм/ч
Образец № 1	–	16,01 ± 0,15	0,56
Образец № 2	16,02 ± 0,4	16,64 ± 0,15	0,55
Образец № 3	35,39 ± 0,4	35,63 ± 0,15	0,52
Образец № 4	44,75 ± 0,4	47,92 ± 0,15	0,51
Образец № 5	69,41 ± 0,4	72,76 ± 0,15	0,45
Образец № 6	–	73,11 ± 0,15	0,46

Из данных представленных в таблице следует, что: 1) по мере увеличения толщины слоя бериллия происходит постепенное нарастание отличия данных общей толщины полученных в расчетах и измеренных по микроизображениям поперечного среза. Различие в значениях общей толщины возникает отчасти из-за использования в расчетах табличной плотности ($\rho_б$ = 1,848 г/см^3) бериллия характерной для объемного материала, что не совсем достоверно, так как элементный анализ дает величину примесей на уровне 3 %, что говорит о более низком значении плотности по сравнению с объемным материалом; 2) средняя скорость напыления бериллия изменяется в пределах от 0,46 мкм/ч (для образца № 6) до 0,56 мкм/ч (для образца № 1). Общая скорость напыления для всего образца складывается из отдельных скоростей, значения которых зависят от подаваемой мощности, как это видно на примере образца № 5. Поэтому для более тонких оболочек наблюдается завышенное значение средней скорости напыления, по сравнению с более толстыми оболочками, ввиду большего вклада составляющей скорости напыления при подаваемой мощности в 250 Вт.

В итоге, по результатам работы можно сделать следующие выводы:

Разработана технология получения полых бериллиевых оболочек методом магнетронного распыления плоской бериллиевой мишени в среде инертного газа. Выработан подход, заключающийся в последовательности действий при формировании бериллиевых оболочек от загрузки полимерной подложки в вакуумную камеру до выгрузки готовой бериллиевой оболочки. Отработаны режимы нанесения бериллия, как на начальных этапах формирования бериллиевой оболочки, так и на последующих этапах наращивания толщины стенки.

Исследовано влияние полимерной подложки на морфологию поверхности и геометрические параметры получаемых бериллиевых оболочек. Данные полученные из анализа интерферограмм

и визуально осмотра подтверждаются изображениями поверхности оболочек полученных с помощью атомно-силового микроскопа и демонстрируют возрастание параметров шероховатости с увеличением толщины бериллиевого слоя. Получена партия полых бериллиевых оболочек диаметром от 1,5 до 2,4 мм и толщиной стенки ~ 70 мкм.

Исследовано влияние условий нанесения на структурно-морфологические свойства сферических бериллиевых оболочек. Получены микроизображения поперечного среза сферических бериллиевых оболочек с разной толщиной стенки и проведен полуколичественный анализ карт распределения элементов по площади поперечного среза.

По микроизображениям поперечного среза, были посчитаны общая толщина оболочки, толщина отдельных слоев и проведен расчет скорости напыления бериллия в зависимости от подаваемой мощности. Зависимость характеризуется закономерным увеличением средней скорости напыления при повышении мощности.

Список литературы

1. Bodner S. E. et al. High-gain direct-drive target design for laser fusion // Physics of plasmas. 2000. Vol. 7, N 6. P. 2298–2301.
2. Lindl J. D. et al. The physics basis for ignition using indirect-drive targets on the NIF // Physics of plasmas. 2004. Vol. 11, N 2. P. 339–491.
3. Haan S. W. et al. NIF Ignition Target Specification and Requirement // Proc. of 12th Target Fabrication Specialists' Meeting. 1998. LA-UR-99-585, 1999. P. 1–12.
4. Lindl J. D. et al. // Physics of plasmas. 1995. Vol. 11, N 2. P. 339–4024.
5. Cook R. et al. Recent Progress in the Development of Capsule Targets for the National Ignition Facility // Proc. of the SPIE. 2003. P. 692, 5228, 2003.
6. Hammel B. A. et al. // High Energy Density Physics. 2010. Vol. 6. P. 171–178.
7. Cook R. NIF target design and fabrication // Report on 3rd Moscow Workshop for ICF Targets & Applications Moscow, Russia, October 16, 2007.