

МОДИФИКАЦИЯ СТРУКТУРЫ УГЛЕРОДНЫХ ПЕРЕЗАРЯДНЫХ ПЛЕНОК С ЦЕЛЬЮ ПОВЫШЕНИЯ ИХ РАДИАЦИОННОЙ СТОЙКОСТИ**А.В. Васин, Э.Н. Можжухин, Г.Н. Козерацкая, А.В. Русавский, Ю.И. Тоцкий**

Работа посвящена проблеме радиационной стойкости углеродных перезарядных мишеней. Представлен краткий исторический обзор и анализ оригинальных экспериментальных результатов авторов. Рассмотрена связь радиационной стойкости мишеней и распределения ориентации графитообразных нанокристаллитов. Методом комбинационного рассеяния света и атомной силовой микроскопии исследовались углеродные пленки, полученные ионным распылением графитовой мишени в магнетроне постоянного тока. Установлено, что основным физико-технологическим параметром осаждения, определяющим преимущественную ориентацию графитообразных нанокристаллитов, является интенсивность ионной бомбардировки в процессе роста пленки.

Введение

Можно считать установленным, что причиной разрушения углеродных перезарядных пленок под воздействием пучков тяжелых ионов является графитизация аморфной структуры в области облучения. Графитизация происходит за счет радиационного нагрева с последующим накоплением в этой области радиационных дефектов, которые приводят к радиационному набуханию графитизированных областей перпендикулярно плоскости пленки и сжатию в плоскости пленки. Наиболее быстро подобный процесс происходит в пленках, структура которых обладает преимущественной ориентацией базисных плоскостей (002) графитообразных нанокристаллитов параллельно плоскости пленки.

Из-за наличия первоначальной текстуры графитизированные области также текстурированы параллельно плоскости пленки. В графитизированных областях за счет коалесценции междоузлий выстраиваются новые базисные плоскости. Сток вакансий происходит из объема нанокристаллитов к их границам. Данные процессы приводят к утолщению пленки и ее сжатию в собственной плоскости. Это сжатие и является в конечном итоге причиной разрушения мишени. Таким образом, повышение радиационной стойкости сводится к задаче задержания процесса графитизации и снижения эффекта радиационного сжатия. Мы не будем останавливаться на механических способах, таких как, например, "ослабление пленок" [1]. Запас свободной поверхности в таких пленках дает некоторый выигрыш во времени до момента натяжения пленки. Рассмотрим способы повышения радиационной стойкости перезарядных мишеней за счет модификации наноструктуры пленок.

В конце 70-х годов была разработана и внедрена во многих лабораториях технология получения перезарядных мишеней из гидрогенизированного углерода [1, 2]. Обычно использовался метод газофазного осаждения из газовой смеси углеводородного газа с аргоном, активированной высоковольтным тлеющим разрядом постоянного тока. Получаемые пленки содержали большое количество водорода (до 40 %). Было убедительно показано, что время жизни таких пленок почти на порядок больше времени жизни пленок, полученных вакуум-термическими методами: с помощью контактной дуги или электронно-лучевым методом. Одним из факторов, обуславливающих радиационную стабильность подобных пленок, является связанный с углеродом водород, который стабилизирует аморфную структуру. Однако при радиационном нагреве пленок водород со временем улетучивается из объема пленки, и начинается процесс графитизации (хотя и с опозданием).

В конце 80-х годов специалистами из Мюнхенского технического университета был проведен цикл исследований, посвященный подробному анализу влияния такого параметра наноструктуры пленок, как распределение ориентации графитообразных нанокристаллитов

[3 - 5]. Степень изотропности оценивалась по анализу картин дифракции электронов. В качестве количественной характеристики было выбрано отношение интенсивностей дифракционных отражений I_{002}/I_{100} . Ими был предложен и обоснован описанный выше механизм разрушения перезарядных мишеней. Разработанная ими методика осаждения углеродных пленок с помощью лазерной абляции графитовой мишени позволила получать пленки с максимальной степенью изотропности (2,2). Было показано, что одним из основных условий получения пленок с изотропной структурой является высокая энергия осаждаемых углеродных атомов.

Экспериментальные результаты и обсуждение

Для исследования влияния кинетических факторов на формирование структуры ближнего порядка в углеродных пленках мы выбрали метод ионного распыления графитовой мишени в магнетроне постоянного тока. Предварительные результаты электронографических исследований данных углеродных пленок показали, что данные пленки обладают достаточно высокой степенью изотропности (1,5), но все-таки уступают пленкам немецких коллег. Кроме того, данная методика имеет проблемы, связанные с получением пленок с высокой однородностью толщины. Для повышения влияния кинетического фактора не обязательно увеличивать энергию осаждаемых частиц, можно воспользоваться независимой ионной стимуляцией, т.е. ввести ионную бомбардировку растущей пленки ионами рабочего газа. Нами были проведены исследования влияния интенсивности бомбардировки ионами азота на формирование наноструктуры и морфологии углеродных пленок, при осаждении с помощью ионного распыления графитовой мишени в магнетроне постоянного тока. Для обеспечения потока ионов на подложку подавалось отрицательное напряжение смещения до 620 В. Анализ структуры и морфологии проводился с помощью комбинационного рассеяния света (КРС) и микроскопии атомных сил. На рис. 1 приведены спектры КРС пленок, полученных при различных напряжениях смещения V_{bias} и подложке во время осаждения в атмосфере азота. Увеличение величины V_{bias} до -200 В не приводит к существенному изменению спектров, если не считать, что фон люминесценции становится гораздо ниже (см. рис. 1, спектры 1 и 2). Спектр КРС представляет собой достаточно хорошо выраженные D- и G-полосы, характерные для аморфных углеродных пленок с размером графитообразных нанокристаллитов порядка 5 нм [6]. Большие изменения спектров происходят при повышении напряжения смещения до -600 В и выше (см. рис. 1, спектр 3). Спектр 3 для образца, полученного при смещении -600 В, идентичен спектрам графита после высокой дозы облучения [7].

На рис. 2 представлены изображения поверхности пленок, полученных без ионной стимуляции (а) и с максимальным смещением -620 В (б). При отсутствии ионной бомбардировки поверхность пленок характеризуется развитой морфологией. Наиболее любопытна трансформация морфологии поверхности пленок имела место у пленок, осажденных при $V_{bias} = -620$ В. При этом на фоне общего уплощения поверхности наблюдается рост игольчатой морфологии. Исследование подобных структур методом дифракции электронов позволяет сделать заключение о преимущественной ориентации графитообразных нанокристаллитов в «иглах» базисными плоскостями перпендикулярно поверхности подложки (т.е. вдоль «игл»).

В обычных условиях за счет слоистой квазидвумерности графитообразной структуры углеродные пленки имеют тенденцию к конденсации графеновыми сетками параллельно поверхности подложки. При рассматриваемых энергиях ионов основные энергетические потери приходится на лобовые столкновения. Сечение столкновения ионов в структуре с сильной анизотропией (такой, как графитообразная структура) существенно зависит от

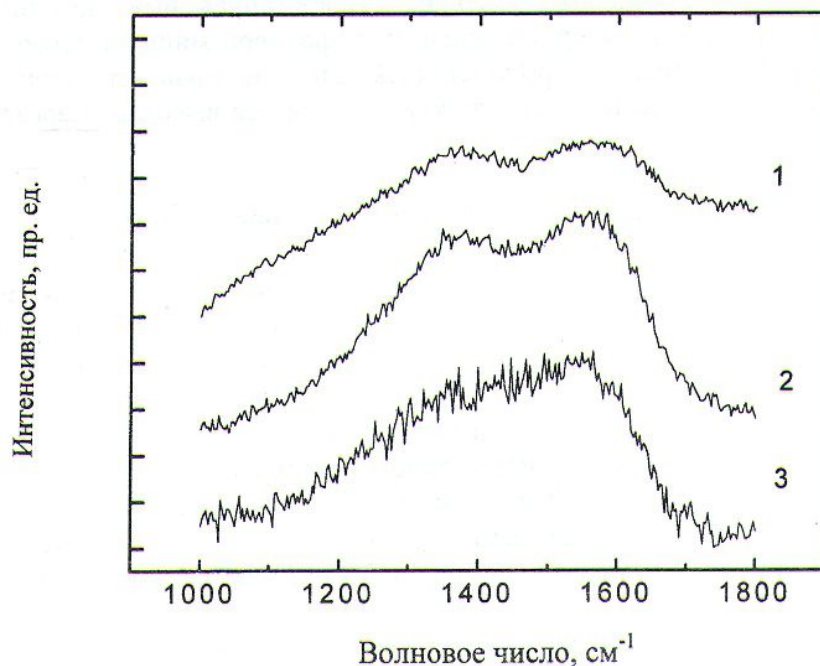


Рис. 1. Спектры КРС углеродных пленок, полученных при различных условиях ионной стимуляции: 1 – $V_{bias} = 0$; 2 – $V_{bias} = -200V$; 3 – $V_{bias} = -600V$.

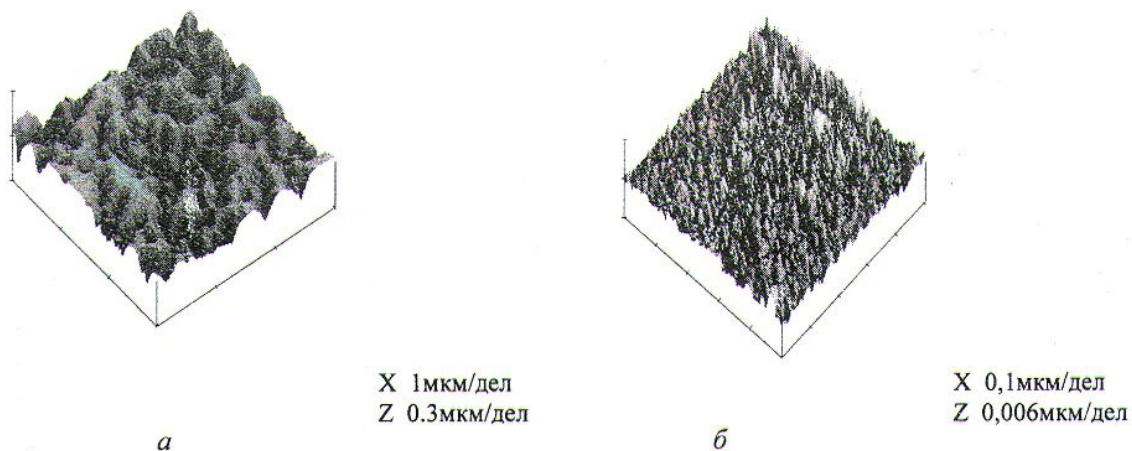


Рис. 2. Изображение поверхности углеродных пленок: а - осажденные без потенциала смещения; б - $V_{bias} = -620 V$, плотность ионного тока на подложкодержателе $\sim 1 \text{ mA/cm}^2$.

плотности атомной упаковки в направлении движения ионов. Плотность упаковки минимальна в направлении, параллельном базисным плоскостям, так как расстояние между базисными плоскостями (002) в кристаллическом графите является максимальным из возможных межплоскостных расстояний. Поэтому формирование преимущественной ориентации углеродных кластеров плоскостями (002) параллельно интенсивному потоку ионов, с этой точки зрения, вполне объяснимо. Нанокристаллиты с другой ориентацией подвергаются более интенсивному распылению.

В последнее время появились сообщения о высоких потенциальных возможностях использования в качестве перезарядных мишеней алмазоподобных аморфных углеродных пленок. Исходя из того, что алмаз обладает большей радиационной стойкостью по сравнению с графитом, делается предположение, что аморфные пленки с алмазоподобным (sp^3 -гибридизация атомов углерода) характером ближнего порядка будут также более радиационно стойкие, чем пленки с преимущественным графитообразным (sp^2 -гибридизация атомов углерода) ближним порядком. В некоторых лабораториях данные пленки прошли успешное испытание [8]. Достигнуто увеличение времени жизни пленок в три раза, по сравнению с пленками полученными стандартным дуговым методом. Однако данные сообщения вызывают некоторые вопросы. Так например известно [6], что углеродные пленки с алмазоподобными свойствами характеризуются высокими напряжениями сжатия. Нами были проведены исследования зависимости механических напряжений в пленках гидрогенизированного углерода. Для осаждения использовалась наиболее широко используемый метод газофазного осаждения из метан-углеродной газовой смеси, активированной ВЧ-разрядом. Было показано, что основным параметром, определяющим структуру пленок при данном методе, является потенциал автосмещения, образующийся на рабочем электроде-подложкодержателе. На рис. 3 представлена зависимость величины механических напряжений от потенциала автосмещения V_{sbias} . Аналогичная зависимость от V_{sbias} наблюдается для плотности пленок и величины микротвердости. Это позволяет сделать вывод, что углеродные пленки, обладающие алмазоподобными свойствами (высокая плотность и твердость), неотъемлемо характеризуются высокими напряжениями сжатия (до 3 ГПа). Поэтому получение их в свободном от подложки виде весьма проблематично. Мы пытались отделить пленки от подложки. Однако после растворения промежуточного слоя

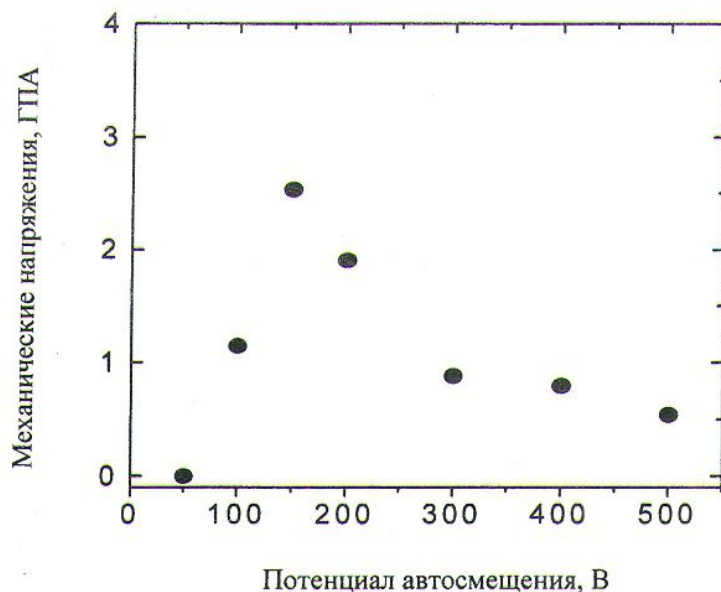


Рис. 3. Зависимость величины механических напряжений в а-С:Н пленках от потенциала автосмещения.

NaCl, пленки рассыпались на мелкие кусочки. Поэтому мы скептически относимся к вышеупомянутому сообщению. Скорее всего здесь имеет место путаница с терминологией. Успешно испытанные пленки были получены на оборудовании, на котором при

определенных условиях получают алмазоподобные пленки. Однако скорее всего, что полученные свободными от подложки пленки обладали либо полимероподобной (высокое содержание водорода и наводороженного sp^3 -гибридизированного углерода), либо графитообразной структурой (высокое содержание sp^2 -фазы), которые характеризуются меньшим уровнем напряжений.

Заключение

Рассмотрена связь радиационной стойкости углеродных презарядных пленок и структурных параметров, таких, например, как гидрогенизация и характер распределения ориентации графитообразных нанокристаллитов. Показано, что с помощью ионной стимуляции процесса осаждения можно добиться преимущественной ориентации графитообразных нанокристаллитов перпендикулярно поверхности пленки. Обосновано, что такая структура должна быть радиационно стойкой.

Однако наиболее простым и перспективным направлением повышения радиационной стойкости углеродных презарядных мишеней, на наш взгляд, является модификация структуры пленок за счет инкорпорирования в них молекул фуллеренов. Фуллерены, как известно [9], представляют собой замкнутые объемные молекулы, содержащих 60, 70 и более атомов углерода. Наличие молекул фуллеренов и их агломератов в объеме пленки будет препятствовать процессу роста графитовых нанокристаллитов, так как они не могут быть вовлечены в процесс графитизации. Эти молекулы устойчивы по отношению к высоким температурам. Кроме того, большой размер этих молекул не позволит им, в отличие от водорода, диффундировать к поверхности и там сублимировать. Повышение содержания фуллеренов в углеродных пленках может быть достигнуто достаточно простой модификацией стандартной дуговой системы (атмосфера гелия, обезгаженные графитовые стержни и т.п.).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Auble R.L., Bair J.K., Galbraith D.M. et al. // Nucl. Instr. and Meth. - 1980. - Vol. 177. - P. 289.
2. Tait N.R.S., Tolfree D.W.L., Whitmell D.S., Armitage B.H. // Nucl. Instr. and Meth. - 1979. - Vol. 163. - P. 1.
3. Dollinger G., Mier-Komor P. // Nucl. Instr. and Meth. - 1989. - Vol. A282. - P. 223.
4. Dollinger G., Mier-Komor P., Mitwalsky A. // Nucl. Instr. and Meth. - 1991. - Vol. A303. - P. 79.
5. Dollinger G., M.Frey C., Mier-Komor P. // Nucl. Instr. and Meth. - 1993. - Vol. A334. - P. 167.
6. Hisao-chu Tsai, Bogy D.B. // J.Vac.Sci.Technol. - 1987. - Vol. A5. - P. 3287.
7. Watanabe H., Takahashi K., Iwaki M. // Nucl. Instr. Meth. - 1993. - Vol. B80/81. - P. 1489.
8. Lietsenstein V.Kh., Ivkova T.M., Olshansky E.D., et al. // Nucl. Instr. Meth. - 1997. - Vol. A397. - P. 140.
9. Елецкий А.В., Смирнов Б.М. // Успехи физических наук. - 1995. - Т. 165. - С. 977.

МОДИФІКАЦІЯ СТРУКТУРИ ВУГЛЕЦЕВИХ ПЕРЕЗАРЯДНИХ ПЛІВОК З МЕТОЮ ПІДВИЩЕННЯ ЇХ РАДІАЦІЙНОЇ СТІЙКОСТІ

А.В. Васін, Е.М. Можжухін, Г.М. Козерацька, А.В. Русавський, Ю.І. Тоцький

Робота присвячена проблемі радіаційної стійкості вуглецевих презарядних мишеней. Подано короткий історичний огляд і оригінальні експериментальні результати авторів. Проаналізовано зв'язок радіаційної стійкості мишеней та розподілу орієнтацій графітоподібних нанокристалітів. Методом комбінаційного розсіювання світла та атомної силової мікроскопії досліджувались

вуглецеві плівки, отримані іонним розпиленням графітової мішені в магнетроні постійного струму. Встановлено, що основним фізико-технологічним параметром осадження, який визначає переважну орієнтацію графітоподібних нанокристалів, є інтенсивність іонного бомбардування під час росту плівки.

MODIFICATION OF THE CARBON STRIPPER FOILS NANOSTRUCTURE WITH THE AIM OF RADIATION RESISTANCE IMPROVEMENT

A.V. Vasin, E.N. Mozzhukhin, G.N. Kozratskaya, A.V. Rusavsky, Y.I. Totsky

The problem of the radiation resistance of the carbon stripper foils is considered. The short historical review and original experimental results of the authors are given. It is considered the correlation of radiation resistance of carbon foils and distribution of the graphitelike nanocrystallites orientations. Raman scattering and atom force microscopy were used for investigation of the carbon films deposited by dc-magnetron sputtering. It is established that the intensity of the ion bombardment during deposition process is a basic technological parameter determining the primary orientation of the graphitelike nanocrystallites.