

УДК 538.971,533.924

ПРИМЕНЕНИЕ СПЕКТРОСКОПИИ РАССЕЯНИЯ ПРОТОНОВ КЭВНЫХ ЭНЕРГИЙ ДЛЯ АНАЛИЗА ОСАЖДЕНИЯ ЛИТИЯ НА ВОЛЬФРАМ

© 2020 г. Д. Г. Булгадарян¹ *, Д. Н. Синельников¹, Н. Е. Ефимов¹, В. А. Курнаев¹

¹Федеральное государственное автономное образовательное учреждение высшего образования
“Национальный исследовательский ядерный университет “МИФИ”, Москва, Россия

*E-mail: DGbulgadaryan@mephi.ru

Поступила в редакцию 09.01.2020 г.

После доработки 07.02.2020 г.

Принята к публикации 26.02.2020 г.

Контроль толщины тонких слоев лития при их осаждении на обращенные к плазме элементы является актуальной задачей в области взаимодействия плазмы с поверхностью термоядерных установок. В данной работе показана применимость спектроскопии рассеяния протонов кэвных энергий для данной цели. Продемонстрирована также чувствительность описываемой методики к химическим реакциям на поверхности и приведены оценки зарядового состояния отраженных от литиевой поверхности ионов водорода.

DOI: 10.31857/S036767652006006X

ВВЕДЕНИЕ

Взаимодействие плазмы с поверхностью материалов обращенных к ней элементов термоядерных установок играет важную роль в достижении параметров плазмы, необходимых для протекания термоядерных реакций [1–4]. Одним из основных кандидатов таких материалов является вольфрам из-за малого коэффициента распыления и высокой температуры плавления [5]. Однако вольфрам обладает большим эффективным зарядом Z_{eff} , что может привести к недопустимо высоким радиационным потерям энергии при попадании атомов вольфрама в центральную плазму. Другой проблемой является накопление в стенках установки термоядерного топлива, то есть гелия и изотопов водорода, приводящее к изменению физических свойств обращенных к плазме элементов (ОПЭ) [6, 7]; но аккумуляция больших количеств радиоактивного трития [8, 9] в принципе неприемлема по соображениям радиационной безопасности. Использование жидких металлов, таких как литий, как для кондиционирования поверхности ОПЭ [10], так и в качестве альтернативного материала дивертора [11, 12] позволяет в некоторой мере нивелировать присущие вольфраму недостатки. Так, применение лития, обладающего малым Z_{eff} на токамаках TFTR [13], LTX [14, 15], NSTX-U [16–18], HT-7 [19], EAST [20, 21], продемонстрировало улучшение параметров и времени удер-

жания плазмы, подавление ЭЛМ-ов, уменьшение рециклинга и потока примесей в центральную плазму.

При использовании в термоядерных установках лития при наличии ОПЭ из вольфрама необходимо контролировать процессы пересадки слоев лития на вольфрам [22], что может быть сведено к определению толщины литиевой пленки. Кроме термоядерных применений, измерение толщины тонких слоев лития и его соединений на тяжелых подложках актуально, к примеру, для разработки твердотельных литиевых батарей [23, 24].

Ранее было показано [25, 26], что спектроскопия рассеяния протонов кэвных энергий позволяет с высокой точностью определять толщину поверхностного слоя, если его атомная масса сильно отличается от атомной массы подложки, в диапазоне толщин от единиц до десятков нм. В данной работе демонстрируется применение этой методики для анализа *in situ* толщины поверхностного слоя при осаждении лития на вольфрам. Также показана возможность использования методики контроля состояния поверхности при химических реакциях с компонентами остаточного газа. Кроме того, приведены оценки зарядового состояния частиц водорода, отражаемых от литиевой поверхности с энергиями в диапазоне 2–20 кэВ, полезные при проектировании жидколитиевых диверторов термоядерных установок [11].

Таблица 1. Парциальные давления компонентов остаточного газа во время осаждения лития

Регистрируемая масса	Парциальное давление, мбар
O ₂	$3 \cdot 10^{-9}$
H ₂	$4 \cdot 10^{-7}$
H ₂ O	$3 \cdot 10^{-8}$
CO ₂	$3.5 \cdot 10^{-9}$

ОПИСАНИЕ ЭКСПЕРИМЕНТА

Эксперименты по применению спектроскопии ионного рассеяния для анализа тонких поверхностных слоев лития в процессе их осаждения проводились на установке “Большой масс-монохроматор МИФИ”, описанной в [27]. Монохроматичность генерируемого ионного пучка составляет 0.005 при начальной энергии $E_0 = 5$ кэВ, а угловая расходимость — 0.01 рад. Максимально достижимая индукция магнитного поля с блоком питания TDK-Lambda Genesys 30–50 составляет 0.4 Тл при токе 50 А, что позволяет сепарировать ионы в соответствии с соотношением $(M [\text{а. е. м.}]/Z) \cdot E_0 [\text{эВ}] \leq 10^6$, то есть через электромагнит можно пропустить, к примеру, пучок ионов Ag⁺ с энергиями до 25 кэВ.

Камера взаимодействия объемом 60 л оснащена девятнадцатью фланцами стандарта ДУ-50 и двумя ДУ-100, что дает возможность использовать большое количество электрических и механических вводов и размещать внутри камеры дополнительные приспособления для проведения различных экспериментов. Для точного позиционирования первичного ионного пучка на мишени на входе в камеру взаимодействия размещена отклоняющая система, позволяющая проводить сканирование мишени ионным пучком, при этом диаметр пучка составляет ~3 мм. Ток пучка на мишень может варьироваться в пределах от 1 до 1000 нА в зависимости от параметров разряда в ионном источнике и измеряется наноамперметром Keithley 6485.

Для сепарации по энергиям отраженных от анализируемого образца или выбитых из него частиц используется четвертьсферический тороидальный электростатический дефлектор с радиусом центральной траектории 21 см и энергетическим разрешением ~1%, позволяющий регистрировать однозарядные ионы с энергией до 25 кэВ с шагом 12 эВ.

Для детектирования ионов после энергоанализатора используется работающий в аналоговом режиме вторично-электронный умножитель ВЭУ-1А с коэффициентом усиления ~100, анодный ток которого измеряется электрометром Keithley 6517В. Этот же электрометр используется для управле-

ния блоками, подающими напряжение на обкладку энергоанализатора. Вакуумная система установки, состоящая из трех спиральных форвакуумных и пяти турбомолекулярных насосов, позволяет достигнуть в камере взаимодействия остаточного давления $\sim 10^{-8}$ мбар.

Литий помещали в стальной короб с затвором и нагревали радиационными нагревателями до контролируемой термпарой температуры 430°C, после чего затвор открывали, и происходило осаждение испаренного лития на мишеный узел, состоящий из кварцевого измерителя толщины (на основе кристалла, произведенного фирмой Inficon) и закрепленных на нем вольфрамовых мишеней размером 24 × 12 мм с зазором между ними 1 мм. Для поддержания температуры кварцевого микробаланса постоянной мы использовали водяное охлаждение, при этом температура корпуса кристалла составляла 14°C. В процессе осаждения лития непрерывно регистрировались показания кварцевого микробаланса и энергетические спектры протонов с начальной энергией $E_0 = 25$ кэВ, отраженных от анализируемых мишеней на угол $\theta = 38^\circ$, до тех пор, пока спектры не прекращали изменяться. Давление в камере взаимодействия во время эксперимента составляло $\sim 10^{-6}$ мбар. Парциальный состав давления, измеряемый квадрупольным масс-спектрометром приведен в табл. 1.

После окончания эксперимента по осаждению лития полученный образец выдерживали в остаточном вакууме в течение двух суток, периодически снимая энергетические спектры и наблюдая за их трансформацией при химической реакции лития с компонентами остаточного газа.

ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

На рис. 1 приведена динамика изменения энергетических спектров протонов, отраженных от вольфрамовых мишеней в процессе осаждения на них лития. По мере увеличения толщины литиевой пленки пик на спектрах сдвигается в область более низких энергий, поскольку сечение рассеяния протонов на вольфраме существенно больше такового на литии, в поверхностном же слое лития происходят преимущественно неупругие потери энергии налетающих частиц. Такая картина характерна для отражения протонов кэВных энергий от двухслойной мишени с тонким легким поверхностным слоем и тяжелой подложкой, как было ранее показано экспериментально и с помощью компьютерного моделирования в работах [25, 26, 28]. На рис. 2а приведены зависимости от времени экспериментальных показаний кварцевого микробаланса, пересчитанные в толщину слоя лития с учетом эффективной площади кристалла, и поло-

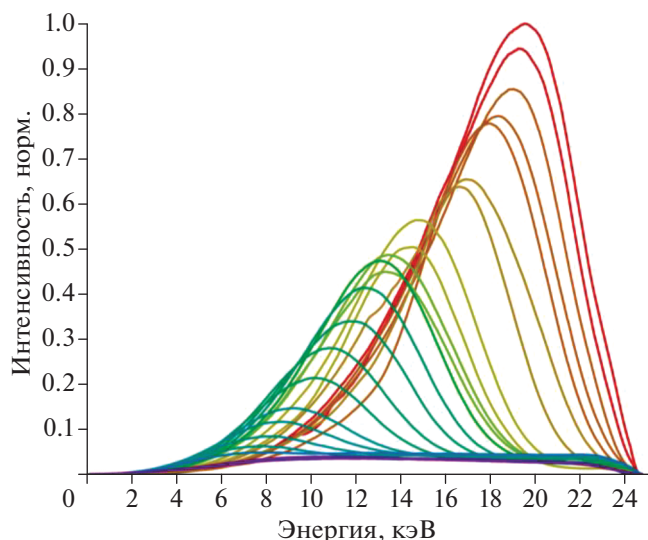


Рис. 1. Энергетические спектры протонов с энергией 25 кэВ, отраженных от вольфрамового образца в процессе осаждения на него лития. Крайний правый спектр соответствует отражению от исходной вольфрамовой мишени, все последующие спектры, имеющие меньшую амплитуду и сдвинутые в область более низких энергий, соответствуют увеличению слоя лития на мишени.

жений пиков энергетических спектров отраженных протонов. Видно, что рост толщины пленки начался еще до открытия затвора литиевого короба, что может быть объяснено его негерметичностью, при этом после открытия затвора было напылено более 80% осажденного лития, поскольку скорость осаждения существенно увеличилась.

Обе кривые хорошо коррелируют, что свидетельствует о высокой чувствительности рассеяния протонов кэВных энергий к толщине слоя лития. На рис. 2б показана зависимость положения пика протонов от толщины слоя лития, измеренного кварцевым микробалансом. Зависимость линейна на участке от 10 нм до максимально возможной для анализа при данных условиях эксперимента ($E_0 = 25$ кэВ, $\theta = 38^\circ$) толщины 55 нм, после которой энергетические спектры отраженных протонов перестают изменяться. Нелинейность зависимости при малых толщинах осаждаемого слоя может быть объяснена неоднородностью литиевой пленки в начале ее роста. Погрешность определения толщины, обусловленная, в первую очередь, разрешением энергоанализатора, составила ± 2.5 нм.

На рис. 3 представлены энергетические спектры отраженных протонов в процессе выдержки осажденного слоя лития в остаточном вакууме после закрытия затвора литиевого короба и, соответственно, прекращения осаждения. Общий рост интенсивности сигнала связан с появлением на поверхности атомов кислорода, увеличивающих положительную зарядовую фракцию отраженных частиц в силу своей высокой электроотрицательности. Смещение пика влево после 5 минут экспозиции при парциальном давлении воды $3 \cdot 10^{-8}$ и давлении водорода $4 \cdot 10^{-7}$ мбар свидетельствует о большом насыщении напыленного слоя водородом (порядка 75–100 атомных слоев), приводящим к уменьшению среднего атомного номера мишени. Появление после пятиминутной выдержки и после выдержки более суток высоко-

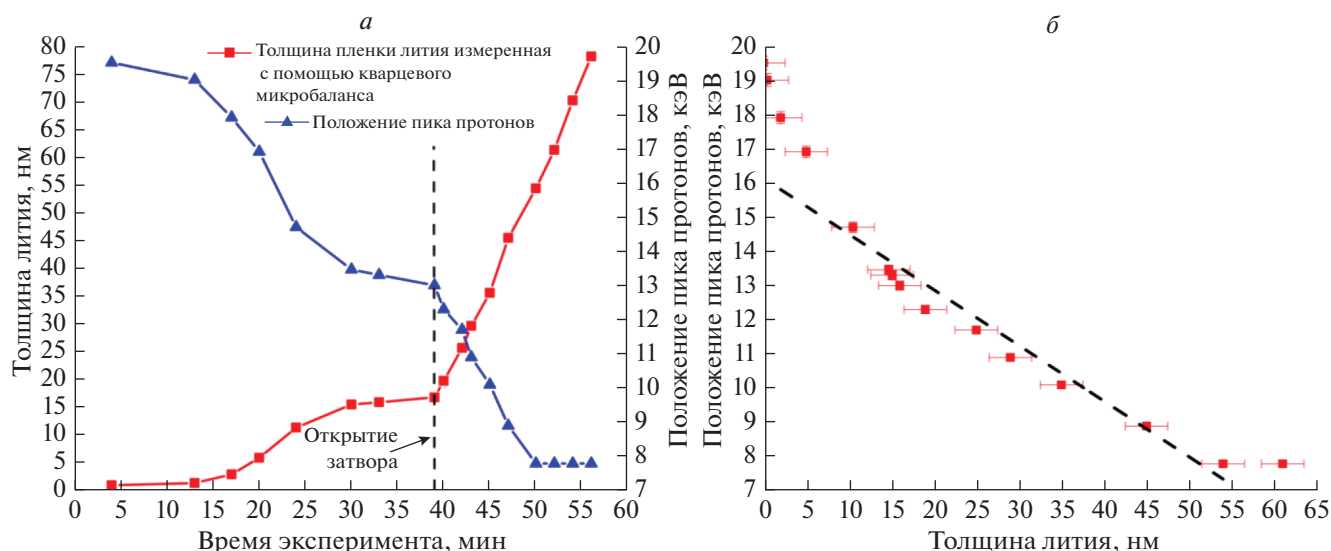


Рис. 2. а – Зависимость толщины литиевой пленки и положения пика протонов на спектрах от времени; б – зависимость положения пика протонов, рассеянных на образце лития на вольфраме, от толщины пленки лития.

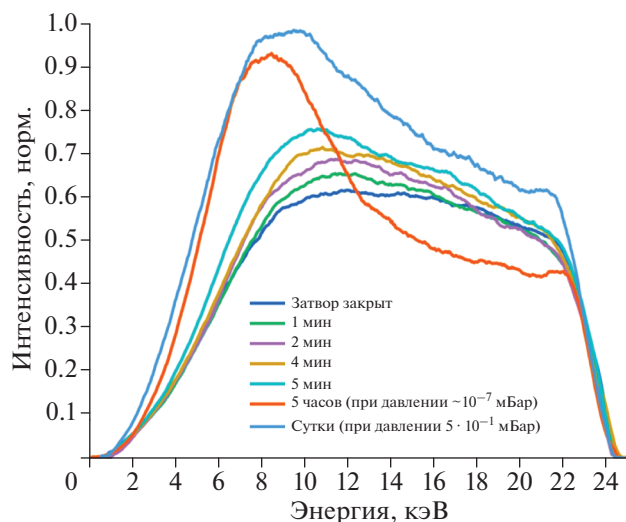


Рис. 3. Энергетические спектры протонов с $E_0 = 25$ кэВ, рассеянных на литии в ходе его выдержки в остаточном вакууме после окончания осаждения.

энергетического пика свидетельствует также о том, что на поверхности пленки появились более тяжелые, чем литий, атомы кислорода. Оба этих фактора объясняются образованием на поверхности осажденного слоя гидроксида лития по следующей схеме: $2\text{Li} + 2\text{H}_2\text{O} \rightarrow 2\text{LiOH} + \text{H}_2$, что характерно для лития ниже температуры плавления [29]. Таким образом, спектроскопия рассеяния протонов кэВных энергий является чувствительной к изменению среднего атомного номера анализируемой мишени и наличию кислорода на ее поверхности. На основании эксперимента можно

сделать предположение, что после осаждения литиевый слой прежде всего насыщается водородом, причем абсорбция кислорода приводит к повышению положительной зарядовой фракции в спектрах протонов. Со временем кислород проникает глубже и меняет состав поверхности на уже доступной для анализа протонным пучком глубине.

На рис. 4а представлены энергетические спектры положительных и отрицательных ионов водорода, отраженных от литиевой мишени после двух суток выдержки в остаточном вакууме при давлении $5 \cdot 10^{-1}$ мбар. Зная соотношение этих

спектров, $k(E) = \frac{N(E)^+}{N(E)^-}$, и используя характер-

ную для окисленных мишеней [30] зависимость положительной зарядовой фракции от энергии $\eta^+ = 0.08\sqrt{E}$ [кэВ], можно получить аналогичную

зависимость для отрицательной $\eta^- = \frac{\eta^+}{k(E)}$ и ней-

тральной зарядовой фракции η^0 из условия $\eta^+ + \eta^- + \eta^0 = 1$. Данные зависимости представлены на рис. 4б. Полученная оценка демонстрирует, что среди отразившегося от окисленного лития водорода в диапазоне 2–20 кэВ преобладает нейтральная фракция, которая, тем не менее, имеет тенденцию к спаду с ростом энергии. Это необходимо учитывать при проектировании литиевых диверторов термоядерных установок, поскольку отраженные в нейтральном состоянии частицы не будут удерживаться магнитным полем, что приведет к увеличению рециклинга.

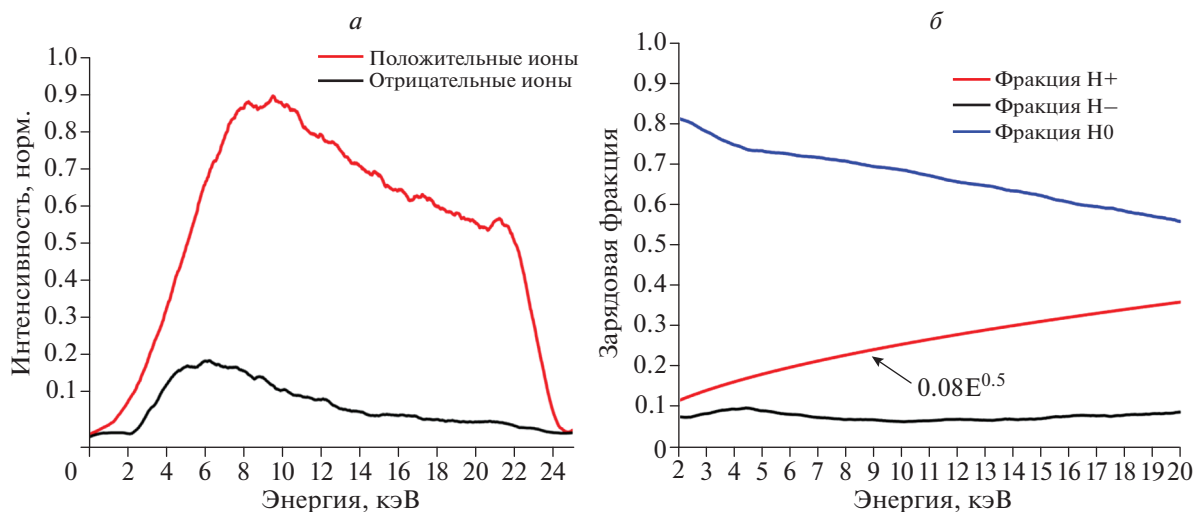


Рис. 4. а – Энергетические спектры ионов водорода, рассеянных на образце после выдержки в вакууме; б – зависимость зарядовых фракций H^+ , H^- , H^0 от энергии.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В работе проведено исследование возможностей применения спектроскопии рассеяния протонов кэВных энергий для анализа *in situ* тонких литиевых слоев при их осаждении на вольфрамовую подложку. Показано, что положение пика на энергетических спектрах отраженных протонов коррелирует с толщиной поверхностного слоя лития. Максимальная анализируемая толщина при начальной энергии протонов $E_0 = 25$ кэВ и угле рассеяния $\theta = 38^\circ$ составила 55 нм, а точность измерений ± 2.5 нм, определяемая в нашем случае разложением энергоанализатора. Продемонстрирована чувствительность методики к химическим реакциям на поверхности анализируемой мишени, в частности, к окислению и увеличению среднего атомного номера материалов мишени в целом. Измерение спектров отрицательных ионов водорода позволило провести оценку зарядового состояния отраженных частиц, показавшую преобладание нейтральной фракции в диапазоне энергий 2–20 кэВ.

Исследование выполнено при финансовой поддержке РФФИ в рамках научного проекта № 20-32-70146.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Federici G., Skinner C., Brooks J. et al.* // Nucl. Fusion. 2001. V. 41. № 12. P. 1967.
2. *Lipschultz B., Bonnin X., Counsell G. et al.* // Nucl. Fusion. 2007. V. 47. № 9. P. 1189.
3. *Roth J., Tsitrine E., Loarte A. et al.* // J. Nucl. Mater. 2009. V. 390. P. 1.
4. *McCracken G.M., Stott P.E.* // Nucl. Fusion. 1979. V. 19. № 7. P. 889.
5. *Philippis V.* // J. Nucl. Mater. 2011. V. 415. № 1. Suppl. P. S2.
6. *Lu G.-H., Zhou H.-B., Becquart C.S.* // Nucl. Fusion. 2014. V. 54. № 8. Art. № 086001.
7. *Temmerman G.D., Hirai T., Pitts R.A.* // Plasma Phys. Control. Fusion. 2018. V. 60. № 4. Art. № 044018.
8. *Hodille E.A., Ghiorghiu F., Addab Y. et al.* // Nucl. Fusion. 2017. V. 57. № 7. Art. № 076019.
9. *Stan-Sion C., Bekris N., Kizane G. et al.* // Nucl. Fusion. 2016. V. 56. № 4. Art. № 046015.
10. *Kaita R.* // Plasma Phys. Control. Fusion. 2019. V. 61. № 11. P. 113001.
11. *Zakharov L.E.* // Nucl. Fusion. 2019. V. 59. № 9. Art. № 096008.
12. *Zakharov L.E., Allain J., Bennett S. et al.* // IEEE Trans. Plasma Sci. 2019. P. 1.
13. *Mansfield D.K., Hill K., Strachan J. et al.* // Phys. Plasmas. 1996. V. 3. № 5. P. 1892.
14. *Majeski R., Abrams T., Boyle D. et al.* // Phys. Plasmas. 2013. V. 20. № 5. Art. № 056103.
15. *Lucia M., Kaita R., Majeski R. et al.* // J. Nucl. Mater. 2015. V. 463. P. 907.
16. *Jaworski M.A., Abrams T., Allain J. et al.* // Nucl. Fusion. 2013. V. 53. № 8. Art. № 083032.
17. *Skinner C.H., Sullenberger R., Koel B. et al.* // J. Nucl. Mater. 2013. V. 438. P. S647.
18. *Ono M., Jaworski M.A., Kaita R. et al.* // Fusion Engin. Design. 2017. V. 117. P. 124.
19. *Ren J., Zuo G., Hu J.S. et al.* // Fusion Engin. Design. 2016. V. 102. P. 36.
20. *Hu J.S., Zuo G., Ren J. et al.* // Nucl. Fusion. 2016. V. 56. № 4. Art. № 046011.
21. *Yang Q., Chen Z., Du Q. et al.* // Fusion Engin. Design. 2017. V. 124. P. 179.
22. *De Castro A., Sepetys A., Gonzales M. et al.* // Nucl. Fusion. 2018. V. 58. № 4. Art. № 046003.
23. *Morita K., Tsuchiya B., Oonishi J. et al.* // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B. 2018. V. 437. P. 8.
24. *Morita K., Tsuchiya B., Tsuchida H. et al.* // Sol. St. Ionics. 2020. V. 344. P. 115135.
25. *Bulgadaryan D., Kurnaev V., Sinelnikov D. et al.* // J. Phys. Conf. Ser. 2018. V. 941. № 1. Art. № 012022.
26. *Bulgadaryan D., Sinelnikov D., Kurnaev V. et al.* // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B. 2019. V. 438. P. 54.
27. *Bulgadaryan D., Sinelnikov D., Kurnaev V. et al.* // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B. 2018. V. 434. P. 9.
28. *Bulgadaryan D., Kolodko D., Kurnaev V. et al.* // J. Phys. Conf. Ser. 2016. V. 748. № 1. Art. № 012016.
29. *Lyublinski I.E., Vertkov A.V., Evtikhin V.A.* // Plasma Devices Operat. 2009. V. 17. № 1. P. 42.
30. *Курнаев В.А., Протасов Ю.С., Цветков И.В.* Введение в пучковую электронику. М.: Троянт, 2008. 452 с.