

04

© 1992 г.

ОПРЕДЕЛЕНИЕ АБСОЛЮТНЫХ СЕЛЕКТИВНЫХ КОЭФФИЦИЕНТОВ РАСПЫЛЕНИЯ В ВОДОРОДНОЙ ПЛАЗМЕ ПОЛОГО КАТОДА

В. В. Дунаев, А. Г. Жиглинский, В. С. Сухомлинов, Э. Н. Фафурина

На основе известного спектрально-зондового метода определения селективных коэффициентов распыления в плазме атомных газов предложена методика определения абсолютных коэффициентов распыления компонентов сплавов в водородной плазме полого катода при энергиях распыляющих частиц порядка нескольких сот эВ. Рассчитаны функции распределения частиц, бомбардирующих поверхность полого катода. Показано, что основной вклад в распыление при типичных условиях разряда в полом катоде (давление газа несколько Тор, плотность тока порядка 10 mA/cm^2) вносят ионы H_3^+ .

В связи с исследованиями перспективных конструкционных материалов для установок термоядерного синтеза определение селективных коэффициентов распыления многокомпонентных сплавов ионами низких (до 1 кэВ) энергий приобретает все большее значение. В работах [1, 2] был предложен и успешно осуществлен спектрально-зондовый метод определения абсолютных селективных коэффициентов распыления многокомпонентных материалов в плазме полого катода (ПК) ионами низких энергий. Авторами рассматривался случай, когда рабочий газ атомарный. Вместе с тем в установках термоядерного синтеза типа токамак основными компонентами рабочего газа являются изотопы водорода. При попытке определения абсолютных коэффициентов распыления в молекулярном газе появляются дополнительные трудности, связанные с тем, что в полом катоде в молекулярной плазме протекает ряд процессов с участием различных молекулярных и атомарных ионов, нейтральных атомов и молекул, которые усложняют определение состава и энергетического спектра частиц, бомбардирующих поверхность ПК. Кроме того, в молекулярном газе перенос распыленных атомов от катода к зонду происходит иначе, чем в атомарном. В данной работе мы попытаемся преодолеть эти трудности.

Рассмотрим сначала механизм формирования функций распределения по энергиям различных ионов, бомбардирующих поверхность цилиндрического ПК. Как известно [3], в низкотемпературной водородной плазме присутствуют в основном ионы H^+ , H_2^+ и H_3^+ . В свечении ПК, где идут процессы ионизации, устанавливаются некоторые стационарные концентрации этих ионов, которые электрическим полем вытягиваются в темное катодное пространство (ТКП). Оценки показывают, что основными реакциями с участием ионов в этой части разряда являются следующие:



Сечение реакции (1) приблизительно в 6—7 раз превосходит сечение реакции (2) [4]. Процессы с участием электронов в ТКП, очевидно, затруднены из-за малой концентрации последних в этой части разряда.

Функция распределения ионов H^+ , бомбардирующих ПК, формируется аналогично функции распределения ионов инертного газа. Часть ионов пролетает ТКП без столкновений и формирует поток ионов с энергией катодного падения. Другая часть испытывает процесс резонансной перезарядки на атомах H (реакция (3)) и формирует более низкоэнергетичную часть потока. Как показывают оценки [5], при типичных условиях ПК — давлениях газа до нескольких Тор, плотности тока порядка 10 mA/cm^2 степень диссоциации молекул H_2 в ПК не превосходит нескольких процентов. Учитывая этот факт, мы, воспользовавшись результатами работы [6] по расчету функции распределения ионов в разряде с ПК в инертном газе и данными о сечении резонансной перезарядки ионами водорода [7], рассчитали функцию распределения $f_{H^+}(v, \rho_k)$, где v — компонента скорости иона H^+ в плоскости, перпендикулярной оси полого катода, ρ_k — радиус катода. Оказалось, что во всем диапазоне указанных условий практически все ионы H^+ имеют энергию, равную катодному падению.

Теперь рассмотрим механизм формирования функций распределения по скоростям ионов H_2^+ и H_3^+ — $f_{H_2^+}(v, \rho_k)$ и $f_{H_3^+}(v, \rho_k)$ соответственно. Учитывая радиальный характер электрического поля в ТКП полого катода и процессы (1) и (2), запишем уравнения Больцмана для этих функций в предположении бесконечного вдоль оси Z ПК [15]

$$\begin{aligned} v \left[\cos\varphi \frac{\partial f_{H_2^+}}{\partial \rho} - \frac{\sin\varphi}{\rho} \frac{\partial f_{H_2^+}}{\partial \rho} \right] + \frac{eE(\rho)}{M_{H_2}} \left[\cos\varphi \frac{\partial f_{H_2^+}}{\partial v} - \frac{\sin\varphi}{v} \frac{\partial f_{H_2^+}}{\partial \varphi} \right] = \\ = - \frac{1}{2\pi} n_{H_2} \sigma_1 v f_{H_2^+} + \frac{1}{2\pi} n_{H_2} \delta \left(\frac{v^2}{2} \right) \sigma_2 I_{H_3^+}(\rho), \\ v \left[\cos\varphi \frac{\partial f_{H_3^+}}{\partial \rho} - \frac{\sin\varphi}{\rho} \frac{\partial f_{H_3^+}}{\partial \rho} \right] + \frac{eE(\rho)}{M_{H_3}} \left[\cos\varphi \frac{\partial f_{H_3^+}}{\partial v} - \frac{\sin\varphi}{v} \frac{\partial f_{H_3^+}}{\partial \varphi} \right] = \\ = - \frac{1}{2\pi} n_{H_2} \sigma_2 v f_{H_3^+} + \frac{1}{2\pi} n_{H_2} \sigma_1 \delta \left(\frac{v^2}{2} \right) I_{H_2^+}(\rho), \end{aligned} \quad (4)$$

где φ — полярный угол цилиндрической системы координат; ρ — радиус в цилиндрической системе координат (ось Z совпадает с осью ПК); e — заряд электрона; M_{H_2} и M_{H_3} — массы ионов H_2^+ и H_3^+ соответственно; $E(\rho)$ — радиальное поле в ТКП; n_{H_2} — концентрация молекул H_2 ; σ_1 и σ_2 — сечения процессов (1) и (2) соответственно; $I_{H_2^+}(\rho)$, $I_{H_3^+}(\rho)$ — плотности потоков ионов H_2^+ и H_3^+ .

После интегрирования по углу φ и совместного решения уравнений (4) получим

$$\begin{aligned} f_{H_2^+}(v, \rho) = f_{H_2^+ \text{ од}}(v, \rho) + f_{H_2^+ \text{ неод}}(v, \rho); \\ f_{H_2^+ \text{ од}}(v, \rho) = \frac{\rho_0}{\rho v} \alpha_{H_2} \exp \left(\frac{\rho_0 - \rho}{\lambda_1} \right); \\ f_{H_2^+ \text{ неод}}(v, \rho) = \frac{1}{\lambda_2} \frac{\rho_{H_2}(v)}{\rho} \frac{1}{v} I_{H_2^+}(\rho_{H_2}(v)) \frac{1}{\frac{e}{M_{H_2}} E(\rho_{H_2}(v))} \exp \left[\frac{\rho_{H_2}(v) - \rho}{\lambda_1} \right]; \end{aligned} \quad (5)$$

$$\begin{aligned} \alpha_{H_2^+} = & \left\{ \left[I_{H_2^+}(\rho_0) - \frac{\mathcal{F}_\Sigma}{\rho_0 \left(1 + \frac{\lambda_2}{\lambda_1} \right)} \right] \left[2 \exp \left(\frac{\rho_0 - \rho}{\lambda_2} \right) - 1 \right] + \right. \\ & + \frac{\mathcal{F}_\Sigma}{\rho_0 \left(1 + \frac{\lambda_2}{\lambda_1} \right)} \left(1 - \frac{\lambda_1}{\lambda_2} \right) \exp \left(\frac{\rho - \rho_0}{\lambda_1} \right) + \frac{\lambda_1}{\lambda_2} \frac{\mathcal{F}_\Sigma}{\rho_0 + \frac{\lambda_2}{\lambda_1}} \Big\} \times \\ & \times \delta \left(\frac{v^2}{2} + \frac{e}{M_{H_2^+}} (V(\rho) - V(\rho_0)) \right), \end{aligned} \quad (5a)$$

соответственно $f_{H_3^+}(v, \rho) = f_{H_3^+ \text{од}}(v, \rho) + f_{H_3^+ \text{неод}}(v, \rho)$,

$$f_{H_3^+ \text{од}}(v, \rho) = \frac{\rho_0}{\rho v} \alpha_{H_3^+} \exp \left(\frac{\rho_0 - \rho}{\lambda_2} \right);$$

$$f_{H_3^+ \text{неод}}(v, \rho) = \frac{1}{\lambda_1} \frac{\rho_{H_3^+}(v)}{\rho v} I_{H_3^+}(\rho_{H_3^+}(v)) \frac{1}{\frac{e}{H_3^+} E(\rho_{H_3^+}(v))} \exp \left\{ \frac{\rho_{H_3^+}(v) - \rho}{\lambda_2} \right\};$$

$$\alpha_{H_3^+} = \left[I_{H_3^+}(\rho_0) - \frac{\mathcal{F}_\Sigma}{\rho_0 \left(1 + \frac{\lambda_1}{\lambda_2} \right)} \right] \left[2 \exp \left(\frac{\rho_0 - \rho}{\lambda_1} \right) - 1 \right] +$$

$$+ \frac{\mathcal{F}_\Sigma}{\rho_0 \left(1 + \frac{\lambda_1}{\lambda_2} \right)} \left(1 - \frac{\lambda_2}{\lambda_1} \right) \exp \left(\frac{\rho - \rho_0}{\lambda_2} \right) + \frac{\lambda_2}{\lambda_1} \frac{\mathcal{F}_\Sigma}{\rho_0 \left(1 + \frac{\lambda_1}{\lambda_2} \right)} \delta \left(\frac{v^2}{2} + \frac{e}{M_{H_3^+}} (V(\rho) - V(\rho_0)) \right).$$

Здесь \mathcal{F}_Σ — суммарный поток ионов H_2^+ и H_3^+ ; λ_1 и λ_2 — длины свободного пробега, соответствующие процессам (1) и (2); ρ_0 — радиус свечения ПК; $V(\rho)$ — распределение потенциала в ТКП; $\rho_{H_3^+}(0)$ — решение уравнения

$$V(\rho_{H_3^+}(v)) - U_{ak} = \frac{1}{2} M_{H_3^+} v^2;$$

$\rho_{H_3^+}(v)$ — решение уравнения

$$V(\rho_{H_2^+}(v)) - U_{ak} = \frac{1}{2} M_{H_2^+} v^2,$$

где U_{ak} — катодное падение.

Смысл полученных формул достаточно очевиден: $f_{H_2^+ \text{од}}$ и $f_{H_3^+ \text{од}}$ — это функции распределения ионов H_2^+ и H_3^+ , которые прошли расстояние $(\rho - \rho_0)$, не испытав ни одного столкновения. Ионы, которые участвовали в реакциях (1) и (2), учитываются функциями $f_{H_2^+ \text{неод}}$ и $f_{H_3^+ \text{неод}}$. Полученные формулы справедливы в предположении $\sigma_1, \sigma_2 = \text{const}$. Что касается σ_1 , то имеются данные, подтверждающие это предположение [4]. Кроме того, из-за малости σ_2/σ_1 результат слабо зависит от вида функции $\sigma_2(v)$.

Таким образом, задача нахождения абсолютных функций распределения ионов H^+ , H_2^+ и H_3^+ , бомбардирующих катод, свелась к определению величин

$I_{H_1^+}(\rho_0)$, $I_{H_2^+}(\rho_0)$ и $I_{H_3^+}(\rho_0)$ — плотности потоков соответствующих ионов на краю свечения ПК. Для их определения обратимся к процессам образования и гибели ионов в свечении. Оценки показывают, что кроме процессов (1) и (2) в свечении идут также процессы



Затем ионы H_2^+ в результате реакции (1) гибнут с образованием ионов H_3^+ , которые в свою очередь переходят в ионы H_2^+ посредством реакции (2). Кроме того, под действием электрического поля и в результате диффузии ионы перемещаются от центральных частей ПК к краю свечения и попадают в ТКП. Согласно данным работ [8, 9], радиальное поле в свечении составляет величину порядка нескольких В/см. Оценки показывают, что при давлениях, больших 0.1 Тор, диффузией по сравнению с подвижностью в радиальном поле такой величины можно пренебречь. Тогда, записывая систему уравнений баланса в свечении, легко получить следующие соотношения:

$$\frac{I_{H_1^+}(\rho_0)}{I_{H_3^+}(\rho_0)} = \frac{n_{H_1^+}(\rho_0)}{n_{H_3^+}(\rho_0)} \approx \text{const} = \gamma; \quad \frac{I_{H_2^+}(\rho_0)}{I_{H_3^+}(\rho_0)} = \frac{n_{H_2^+}(\rho_0)}{n_{H_3^+}(\rho_0)} = \frac{\lambda_1}{\lambda_2}. \quad (8)$$

Кроме того, интегрируя выражения (5) и (5а), имеем для плотностей потоков $I_{H_2^+}(\rho)$ и $I_{H_3^+}(\rho)$ выражения

$$\begin{aligned} I_{H_3^+}(\rho) &= I_{H_3^+}(\rho_0) \frac{\rho_0}{\rho} \exp \left[(\rho_0 - \rho) \left(\frac{1}{\lambda_1} + \frac{1}{\lambda_2} \right) \right] + \\ &+ \frac{\mathcal{F}_\Sigma}{\rho \left(1 + \frac{\lambda_1}{\lambda_2} \right)} \left\{ 1 - \exp \left[(\rho_0 - \rho) \left(\frac{1}{\lambda_1} + \frac{1}{\lambda_2} \right) \right] \right\}, \\ I_{H_2^+}(\rho) &= I_{H_2^+}(\rho_0) \frac{\rho_0}{\rho} \exp \left[(\rho_0 - \rho) \left(\frac{1}{\lambda_1} + \frac{1}{\lambda_2} \right) \right] + \\ &+ \frac{\mathcal{F}_\Sigma}{\rho \left(1 + \frac{\lambda_1}{\lambda_2} \right)} \left\{ 1 - \exp \left[(\rho_0 - \rho) \left(\frac{1}{\lambda_1} + \frac{1}{\lambda_2} \right) \right] \right\}, \\ I_{H_2^+}(\rho) + I_{H_3^+}(\rho) &= \frac{\mathcal{F}_\Sigma}{\rho}. \end{aligned} \quad (9)$$

Далее, используя очевидное соотношение

$$i = 2\pi\rho_k \left[I_{H_1^+}(\rho_k) + I_{H_2^+}(\rho_k) + I_{H_3^+}(\rho_k) \right]$$

и формулы (8) и (9), имеем окончательно

$$\begin{aligned} I_{H_3^+}(\rho_0) &= \left\{ I_{H_3^+}(\rho_k) - \frac{I_{H_3^+}(\rho_k) + I_{H_2^+}(\rho_k)}{\rho_k \left(1 + \frac{\lambda_1}{\lambda_2} \right)} \left\{ 1 - \exp \left[(\rho_0 - \rho_k) \left(\frac{1}{\lambda_1} + \frac{1}{\lambda_2} \right) \right] \right\} \right\} \times \\ &\times \frac{\rho_k}{\rho_0} \exp \left[(\rho_k - \rho_0) \left(\frac{1}{\lambda_1} + \frac{1}{\lambda_2} \right) \right], \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
I_{H_2^+}(\rho_0) &= \left\{ I_{H_2^+}(\rho_k) - \frac{I_{H_2^+}(\rho_k) + I_{H_3^+}(\rho_k)}{\rho_k \left(1 + \frac{\lambda_2}{\lambda_1}\right)} \left\{ 1 - \exp \left[(\rho_0 - \rho_k) \left(\frac{1}{\lambda_1} + \frac{1}{\lambda_2} \right) \right] \right\} \right\} \times \\
&\quad \times \frac{\rho_k}{\rho_0} \exp \left[(\rho_k - \rho_0) \left(\frac{1}{\lambda_1} + \frac{1}{\lambda_2} \right) \right], \\
I_{H_2^+}(\rho_k) &= \frac{i}{2\pi\rho_k e} \frac{\lambda_1}{\lambda_2} \frac{1}{1 + \frac{\lambda_1}{\lambda_2} + \gamma}, \quad I_{H_3^+}(\rho_k) = \frac{i}{2\pi\rho_k e} \frac{1}{1 + \frac{\lambda_1}{\lambda_2} + \gamma}, \\
I_{H_3^+}(\rho_k) &= \frac{i}{2\pi\rho_k e} \gamma \frac{1}{1 + \frac{\lambda_1}{\lambda_2} + \gamma}. \tag{10}
\end{aligned}$$

Как уже упоминалось, величины $\gamma, \lambda_1/\lambda_2 \ll 1$. Из формул (10) следует, что в этом случае практически все ионы, бомбардирующие поверхность ПК, — H_3^+ . Расчеты функции распределения $f_{H_3^+}(v, \rho_k)$ в диапазоне условий, типичных для ПК, и с использованием численных значений сечений $\sigma_1 = 10^{-14} \text{ см}^2$, $\sigma_2 = 1.5 \cdot 10^{-15} \text{ см}^2$ [4] показывают, что более 95% ионов H_3^+ имеют энергию, равную величине катодного падения.

Что касается быстрых атомов и молекул перезарядки, то вклад их в распыление незначителен (согласно нашим оценкам, не более 5%), во-первых, из-за малой эффективности процесса (3) (ввиду того, что $\gamma \ll 1$), во-вторых, из-за того, что длина пробега λ_2 оказывается порядка ширины ТКП, что затрудняет протекание в ТКП реакции (2).

Для корректного применения зондового метода измерения селективных коэффициентов распыления в плазме необходимо вычислить, какая часть распыленных атомов металла попадает на цилиндрический зонд, расположенный на оси ПК. В случае, когда зонд «атомарный», это сделано в работах [10, 11]. При наличии же молекулярного зонда процесс переноса распыленных атомов от катода к зонду, как уже говорилось, происходит, вообще говоря, иначе из-за наличия у молекулы колебательной и вращательной степеней свободы. Однако в случае молекулы водорода (и его изотопов) ситуация упрощается. Как показывают оценки, для этих молекул процесс обмена энергией между вращательной и поступательной, а также между колебательной и поступательной степенями свободы при столкновении с атомом носит адиабатический характер, что приводит к малым вероятностям колебательных и вращательных переходов [12], т. е. при рассмотрении процесса переноса атомов в H_2 можно использовать формулы для атомарного газа.

Для проверки результатов данной работы мы сравнивали коэффициенты распыления Ni и Fe ионами D^+ (с энергией 200 эВ) $S_{Ni} \approx S_{Fe} \approx 0.03$ [13] с данными, полученными нами в ПК (коэффициент распыления $S_{Ni} \approx S_{Fe} \approx 0.09$ ионами D_3^+ с энергией 600 эВ). Следует отметить, что, как известно [14], распыление ионами D_3^+ проходит путем распада на поверхности иона $D_3^+ \rightarrow D^+ + D + D$, причем каждая образовавшаяся частица обладает втрое меньшей энергией, чем ион D_3^+ , а распыляющие способности D^+ и D одинаковы, т. е. из наших экспериментов следует, что коэффициенты распыления ионами D_3^+ с энергией 200 эВ $S_{Ni} \approx S_{Fe} \approx 0.03$. Видно, что соответствие наших данных с данными работы [13] хорошее.

Таким образом, в работе предложена методика определения абсолютных селективных коэффициентов распыления многокомпонентных материалов ионами

низких энергий в водороде и его изотопах, основанная на известном спектрально-зондовом методе [1, 2]. Коэффициенты распыления чистых материалов, полученные по предложенной методике, совпадают с известными литературными данными. Ранее авторами зондового метода были измерены селективные коэффициенты распыления ряда конструкционных материалов в дейтериевой плазме ПК [15]. Результаты данной работы позволяют интерпретировать эти данные не как относительные, а как абсолютные.

Список литературы

- [1] Жиглинский А. Г., Кунд Г. Г., Преснухина И. П. // ЖТФ. 1976. Т. 46. Вып. 10. С. 2218—2222.
- [2] Дунаев В. В., Жиглинский А. Г., Преснухина И. П., Фафурина Э. Н. // ЖТФ. 1978. Т. 48. Вып. 6. С. 1672—1674.
- [3] Бондаренко Л. В. // ЖТФ. 1976. Т. 46. Вып. 12. С. 2535—2540.
- [4] Химия плазмы / Под ред. Б. Н. Смирнова. М.: Энергоатомиздат, 1987. 291 с.
- [5] Хворостовский С. Н. Автореф. канд. дис. Л., 1973. 17 с.
- [6] Кучинский В. В., Сухомлинов В. С., Шейкин Е. Г. // ЖТФ. 1985. Т. 55. Вып. 1. С. 67—72.
- [7] Галицкий В. М., Никитин Е. Е., Смирнов Б. М. Теория столкновения атомных частиц. М.: Наука, 1981. 256 с.
- [8] Helm H., Howarka F., Pahl. // Z. Naturforsch. 1972. Vol. 27A. N 10. P. 1417—1425.
- [9] Москалев Б. И. Разряд с полым катодом. М.: Энергия, 1969. 184 с.
- [10] Жиглинский А. Г., Измайлов А. М., Кучинский В. В., Шейкин Е. Г. // Изв. вузов СССР. Сер. физ. 1982. № 10. С. 3—7.
- [11] Жиглинский А. Г., Кучинский В. В., Шейкин Е. Г. // ЖТФ. 1986. Т. 56. Вып. 9. С. 1718—1723.
- [12] Гордиц Б. Ф., Осипов А. И., Шелепин Л. А. Кинетические процессы в газах и молекулярные лазеры. М.: Наука, 1980. 512 с.
- [13] Распыление твердых тел ионной бомбардировкой / Под ред. Р. Бериша. М.: Мир, 1984. 336 с.
- [14] Andersen H. H., Bay H. L // J. Appl. Phys. 1975. Vol. 46. P. 2416—2420.
- [15] Гаганин А. Д. Теория ядерных реакторов на тепловых нейтронах. М.: Атомиздат, 1959. 303 с.

С.-Петербургский университет

Поступило в Редакцию
22 апреля 1991 г.