
МАТЕРИАЛЫ И ТЕХНОЛОГИЯ
ДЛЯ НОВЫХ ИСТОЧНИКОВ ЭНЕРГИИ

УДК 539.216.2, 621.373.826

ИССЛЕДОВАНИЕ ВЛИЯНИЯ ФОКУСИРОВКИ ЛАЗЕРНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ НА ЧУВСТВИТЕЛЬНОСТЬ АНАЛИЗА СОДЕРЖАНИЯ ИЗОТОПОВ ВОДОРОДА В ОСАЖДЕННЫХ ИЗ ПЛАЗМЫ СЛОЯХ МЕТОДОМ ЛАЗЕРНО-ИНДУЦИРОВАННОЙ ДЕСОРБЦИИ

© 2020 г. С. А. Крат^{а, *}, А. П. Харина^а, И. А. Сорокин^{а, b}, В. А. Костюшин^а,
Е. Д. Вовченко^а, В. А. Курнаев^а

^аНациональный исследовательский ядерный университет “МИФИ”, г. Москва, 115409 Россия

^бФрязинский филиал Института радиотехники и электроники им. В.А. Котельникова РАН, 141120 Россия

*E-mail: SAKrat@mephi.ru

Поступила в редакцию 12.12.2019 г.

После доработки 16.12.2019 г.

Принята к публикации 16.12.2019 г.

Исследована эффективность метода лазерно-индуцированной десорбции как детектора изотопов водорода при импульсном лазерном облучении (длина волны 1064 нм, 100 мДж, длительность 10 нс) для различных плотностей мощности падающего излучения на насыщенные дейтерием тонкие титановые пленки. При увеличении плотности потока мощности в 16 раз интенсивность пика термодесорбции возрастает более чем на 2 порядка по величине. Долговременное многократное облучение поверхности не приводит к существенному истощению содержания изотопов водорода в изучаемых слоях, позволяя проводить их дальнейший ex-situ анализ.

Ключевые слова: лазерно-индуцированная десорбция, накопление водорода, техника измерений, термодесорбционная спектроскопия

DOI: 10.1134/S2079562920040089

ВВЕДЕНИЕ

Накопление изотопов водорода в термоядерных установках — критически важный вопрос, во многом определяющий их функциональность и время эксплуатации. Накопление радиоактивного изотопа водорода трития ограничивает время жизни установок с точки зрения радиационной безопасности, в частности, согласно норм безопасности, в международном реакторе ИТЭР недопустимо накопление более 1000 г трития [1]. С точки зрения функционирования экспериментальных установок накопление изотопов водорода в приповерхностных слоях обращенных к плазме элементов и их последующая десорбция из этих слоев (водородный рециклинг) являются определяющими с точки зрения поведения плазмы во время разряда [2].

С практической точки зрения измерение накопления водорода в приповерхностных слоях элементов внутренней стенки токамака представляет собой большую сложность, так как ex-situ анализ (с выносом образцов из установки) может давать результаты, существенно отличающиеся от физической картины, наблюдаемой in-vacuo

непосредственно в установке [3], а организация механического доступа к элементам поверхности внутренней стенки, в отличие от элементов внешней стенки, технически затруднена и не всегда возможна [4]. Это особенно касается малых установок, на которых невозможно создание сложных систем референтных образцов, которые возможно было бы извлечь из токамака между разрядами не подвергая их контакту с атмосферой. В связи с этим приоритетным направлением исследований является разработка удаленных методов анализа состава поверхности и накопления изотопов водорода в ней, таких как лазерно-индуцированная эмиссионная спектроскопия (ЛИЭС) и лазерно-индуцированная десорбция (ЛИД). Привлекательность последней состоит, помимо прочего, в ее технической простоте и в простоте интерпретации полученных с ее помощью данных.

В данной работе приведено исследование чувствительности, а также особенностей регистрации сигнала лазерно-индуцированной десорбции по сравнению с классическим термодесорбционным (ТДС) in-vacuo анализом на примере анализа содержания дейтерия в титан-дейтериевых соосажденных слоях микронной толщины.

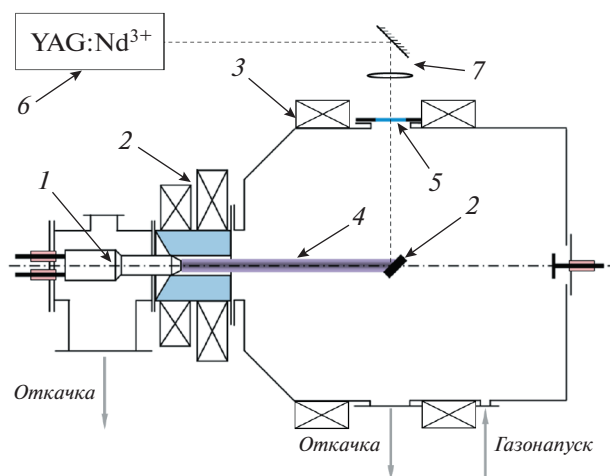


Рис. 1. Схема установки: 1 — электронная пушка, 2 — фокусирующие катушки, 3 — катушки Гельмгольца, 4 — электронный пучок, 5 — кварцевое стекло, 6 — лазер, 7 — оптическая система, 8 — образец.

ОПИСАНИЕ ЭКСПЕРИМЕНТА

Эксперименты по исследованию чувствительности лазерной десорбции проводились на плазменной установке, оснащенной электронной пушкой. Установка представляет собой плазмохимический реактор, используемый для исследования процессов формирования пучковой плазмы и пучково-плазменного разряда (ППР) в слабом магнитном поле как эффективного источника низкоэнергетических ионных потоков для мягкого травления микро- и наноструктур [5–7]. Схема установки с ППР представлена на рисунке 1.

Установка состоит из двух частей, соединенных тонкой (перепадной) трубкой диаметром 20 мм, обеспечивающей перепад давления между камерой электронной пушки и плазменным объемом на порядок. Установка откачивалась до предельного остаточного давления менее 10^{-3} Па двумя диффузионными насосами с азотными криоловушками.

В центральную часть установки с помощью подвижного ввода через шлюз помещались исследуемые образцы. Ввод движения позволял корректировать положение образцов в течение эксперимента. Держатель образца предусматривал тепловую развязку в виде керамических вставок. Для контроля температуры образца использовалась термопара К-типа.

В качестве образцов использовались титан-дейтериевые пленки, осажденные на молибденовую подложку размером 8×8 мм. Толщина слоев составляла от ~ 100 нм до ~ 5 мкм, осаждение титана с дейтерием происходило на установке МР-2 [8] при температурах, близких к комнатной, что гарантирует содержание дейтерия в пленке близкое к стехиометрии TiD_2 . Дейтерид титана был

использован как материал, хорошо переносящий контакт с атмосферным воздухом, содержащий большое количество водорода (дейтерия) на атом металла, с ранее исследованным хорошо известным десорбционным спектром водорода.

Нагрев для проведения термодесорбционной спектроскопии в настоящей работе проводился двумя методами: лазерным излучением и электронным пучком. В качестве источника лазерного излучения использовался YAG:Nd^{3+} лазер с длиной волны 1.064 мкм.

При облучении мишени пучком лазерного излучения использовались два режима. В первом режиме мишень облучалась прямым лазерным пучком без использования формирующей оптики. Для энергии лазерного пучка 0.1 Дж, длительности импульса 10 нс и диаметре пучка 6 мм интенсивность на мишени составила величину $3.5 \cdot 10^7$ Вт/см². Во втором режиме (фокусировки) собирающая кварцевая линза с фокусным расстоянием 50 см располагалась перед окном вакуумной камеры на расстоянии 65 см от мишени. При этом диаметр пятна на мишени был уменьшен до 1.8 мм, что на порядок увеличило интенсивность излучения на мишени (до $4 \cdot 10^8$ Вт/см²).

После лазерного облучения для определения остаточного содержания дейтерия в пленках, а также для определения влияния лазерного излучения на десорбционный спектр водорода и характерные температуры десорбции с помощью электронного пучка проводился ТДС анализ поверхности. Нагрев проводился в широком диапазоне температур (до 800°C). Электронный пучок в основную камеру инжектировался с помощью диодной пушки Пирса с косвенным накалом LaB_6 катода. Энергия пучка варьировалась в диапазоне от 1 до 4 кэВ с током эмиссии — до 500 мА. Поперечный размер электронного пучка зависит от продольного магнитного поля, создаваемого в области дрейфа (в области перепадной трубки между двумя частями камеры) с помощью фокусирующих катушек (индукцией до 10 мТл), в основной камере — с помощью катушек Гельмгольца (до 13 мТл). Диаметр электронного пучка в среднем составлял 1 см, что позволяло равномерно нагревать используемые образцы. Линейное нарастание температуры при проведении ТДС обеспечивалось с помощью увеличения тока в фокусирующих катушках, при этом ускоряющее напряжение и ток эмиссии электронной пушки оставались неизменными в течение нагрева.

Для фиксации потоков газа, десорбированных из покрытий под действием лазерного излучения и нагревом электронным пучком, использовался квадрупольный масс-спектрометр Extorr 100M. Фиксировались сигналы ионов 3-х различных

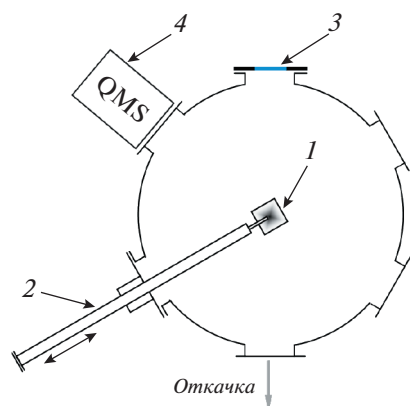


Рис. 2. Расположение экспериментального оборудования в камере установки: 1 — образец, 2 — ввод движения, 3 — кварцевое стекло, 4 — квадрупольный масс-спектрометр.

атомных масс — 2-ой (H_2), 3-ей (HD), 4-ой (D_2). Время набора статистики сигнала каждой массы составляло 28 мс, таким образом, время сбора одной точки составляло 84 мс. Такое время было выбрано исходя из соображений получения достаточной чувствительности для регистрации ненулевого фонового сигнала 4-ой массы (D_2).

На рис. 2 представлено расположение оборудования в центральном сечении установки.

При изучении зависимости сигналов потоков десорбирующих частиц от плотности потока мощности для различных толщин пленок последние облучались лазерным излучением с разной фокусировкой. Облучение происходило сначала в режиме однократного импульса, а потом в режиме многократных импульсов, при котором на образец воздействовало лазерное излучение с частотой 10 Гц.

ПОЛУЧЕННЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

Сфокусированное облучение

На рисунке 3 отображена зависимость сигналов водород-содержащих масс от времени при однократном сфокусированном лазерном импульсном облучении толстого (~5 мкм) слоя TiD_x на мишени. Можно видеть, что наблюдается интенсивный пик десорбции 4-ой (D_2) и 3-ей (HD) атомных масс. При этом для толстой пленки преобладающим является сигнал 4-ой массы, что говорит о преимущественной десорбции D_2 с поверхности, то есть о рекомбинационном механизме десорбции. Вероятнее всего, сигнал 3-ей атомной массы связан не с наличием большого количества протия в облучаемом слое, а с десорбцией атомарного дейтерия с поверхности в результате ее частичного испарения и его

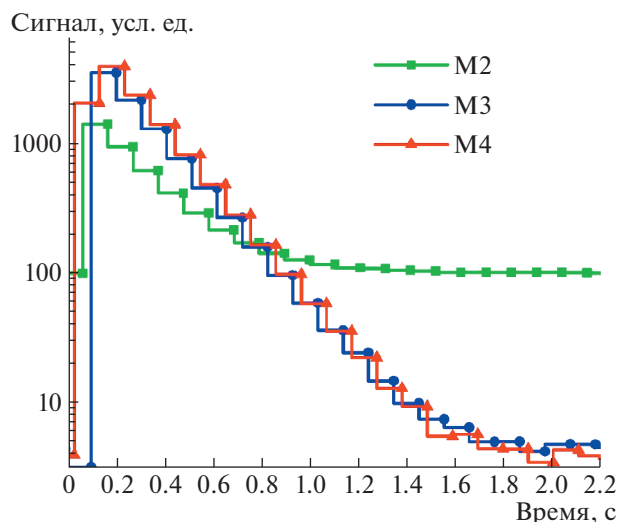


Рис. 3. зависимость десорбционных потоков 2-ой, 3-ей, 4-ой атомных масс при однократном сфокусированном облучении лазером толстой TiD_x пленки от времени после импульса

последующей рекомбинацией с протием остаточных газов на стенках установки. Временной фронт нарастания сигнала составляет менее 28 мс (время набора статистики квадрупольным масс-спектрометром для снятия одной точки). Для пика характерен экспоненциальный спад после начального импульса, связанный с конечной скоростью вакуумной откачки в установке, и описываемый

уравнением $I_0 \sim e^{-\frac{t}{\tau}}$, где $\tau \approx 0.2$ с — постоянная откачки. Время полного выхода на фон составляет ~1.6 с. При этом превышение уровня сигнала над фоновым уровнем составляет три порядка. Таким образом, можно говорить о высокой чувствительности метода из-за высокой скорости нагрева и соответствующего ему короткого фронта десорбции.

При многократном облучении образца лазером с частотой импульса 10 Гц наблюдается картина быстрого начального выхода изотопов водорода с последующим спадом после $t \sim 20$ с, то есть после ~200 импульсов (рис. 4). Можно видеть, что с каждым последующим импульсом наблюдается быстрый спад отклика (сигнала десорбции) на облучение. Вероятно, это связано с обеднением после импульса приповерхностного слоя дейтерием. При этом даже после более чем 2000 импульсов не наблюдается полного истощения дейтерия в облучаемой области, о чем можно судить по мгновенному спаду сигнала дейтерия и дейтерида протия после конца облучения. Так как макроскопический нагрев образца в конце облучения, измеренный термопарным измерителем К-

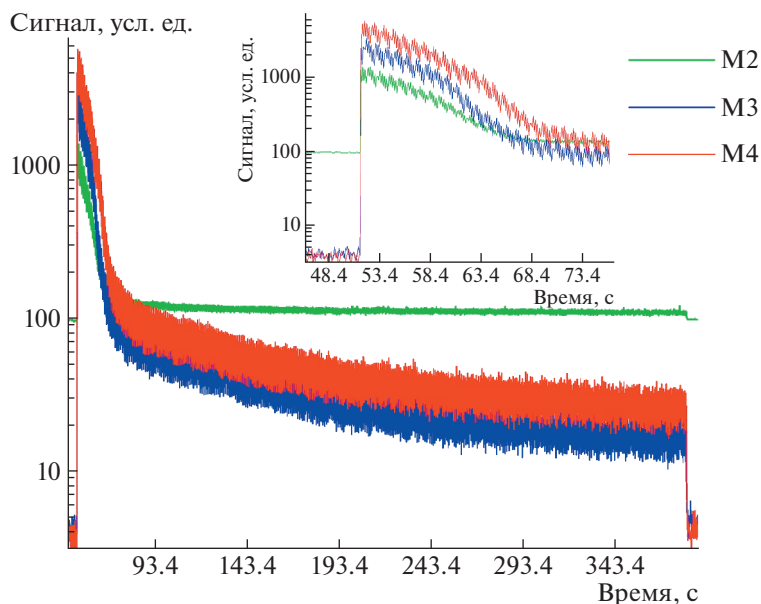


Рис. 4. Зависимость от времени сигналов термодесорбции 2-ой, 3-ей, 4-ой атомных масс при многократном сфокусированном облучении лазером толстой TiD_x пленки.

типа, закрепленным на обратной стороне образца, не превышал 100°C , можно предположить, что диффузия дейтерия из других областей пленки в область облучения (где должен был происходить локальный перегрев поверхности) должна быть малой.

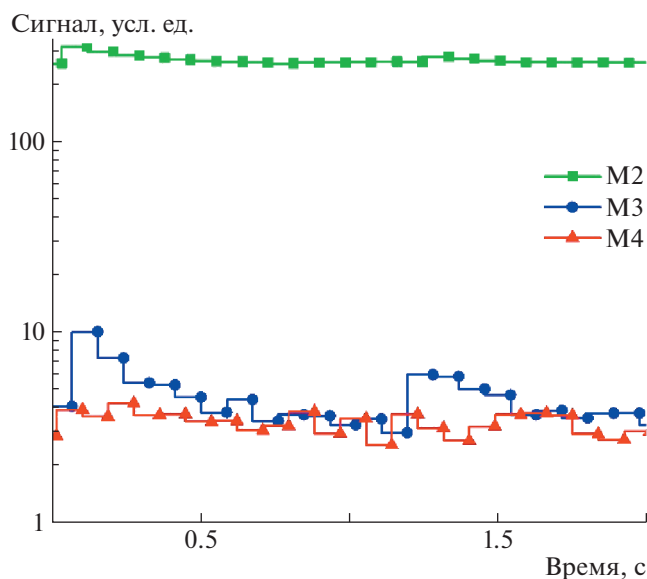


Рис. 5. Зависимость от времени сигналов термодесорбции 2-ой, 3-ей, 4-ой атомных масс при двукратном сфокусированном облучении лазером тонкой TiD_x пленки.

При сфокусированном облучении тонких (толщиной ~ 100 нм) пленок (рис. 5) можно видеть, что, в отличие от толстой пленки, для которой наибольшим сигналом является сигнал 4-ой массы (D_2), для тонкой пленки сигнал 4-ой массы не наблюдается вообще, а наблюдается выход только 3-ей массы. При этом в отличие от толстой пленки, наблюдалось локальное разрушение тонкой пленки после лазерного облучения. Таким образом, можно предположить, что происходит выход атомарного дейтерия в ходе испарения поверхностного слоя и его дальнейшая рекомбинация с противнем на стенках установки, в то время как при облучении толстой пленки происходит как испарение атомарного дейтерия, так и десорбция дейтерия в виде молекул дейтерия из-за нагрева сравнительно толстого слоя Ti-D без его разрушения.

Таким образом, можно сказать, что лазерно-стимулированная десорбция сфокусированным лазерным пучком является эффективным и высокочувствительным методом детектирования содержания изотопов водорода в осажденных на поверхности тонких слоях, обеспечивающая регистрацию полезного сигнала более чем на 3 порядка по величине превышающего фоновое значение.

Несфокусированное облучение

На рис. 6 представлена картина многократного облучения всей поверхности образца несфокуси-

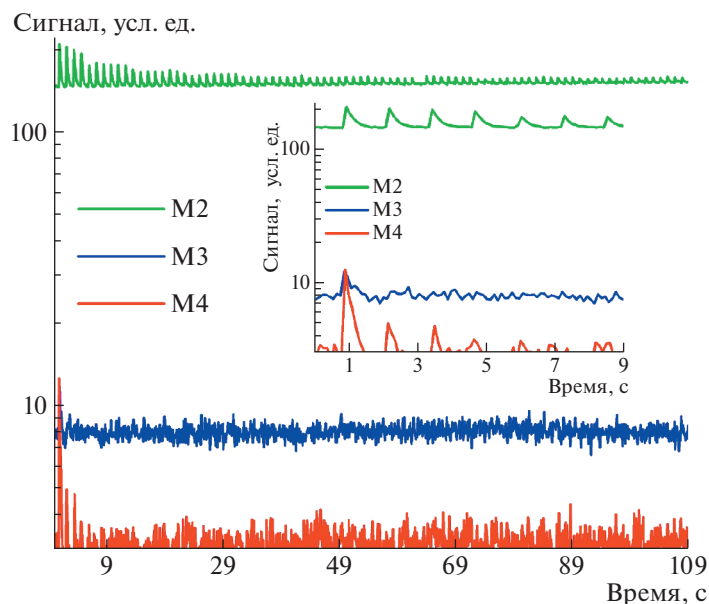


Рис. 6. Зависимость сигналов термодесорбции 2-ой, 3-ей, 4-ой атомных масс при многократном несфокусированном облучении толстой Ti-D пленки лазером от времени.

рованным лазерным облучением, равномерно распределенным по всей поверхности образца, с частотой 1 Гц. Можно видеть, что отклик образца на облучение гораздо слабее, чем при облучении сфокусированным облучением, несмотря на большую облучаемую поверхность. Так, сигнал 4-ой атомной массы превышает фон в 10 раз, то есть уровень сигнала в 100 раз меньше, чем при

сфокусированном облучении, сигнал 2-ой атомной массы в 10 раз меньше, чем при облучении сфокусированным лазерным облучением. При этом важно отметить, что в отличие от облучения сфокусированным лазерным облучением, практически полностью отсутствует сигнал 3-ей атомной массы. Вероятной причиной данной разницы является меньший нагрев поверхности,

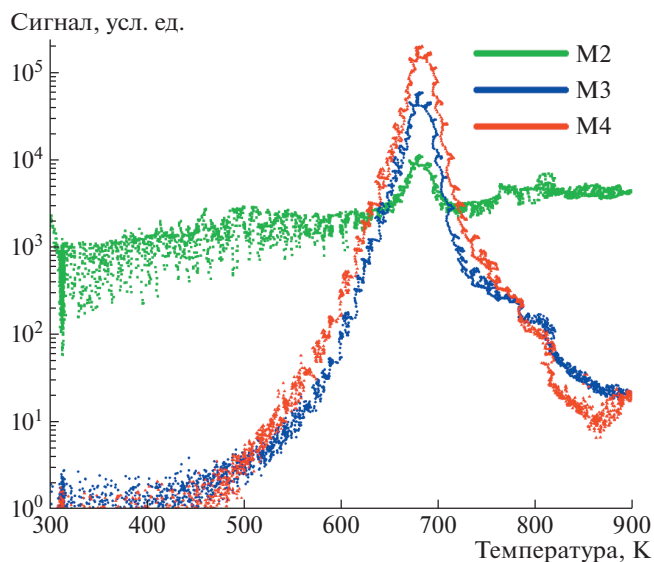


Рис. 7. ТДС-спектр водород-содержащих масс при ТДС-анализе толстой Ti-D пленки, предварительно облученной лазером без фокусировки.

что приводит к меньшей вероятности выхода атомарного дейтерия из пленки с последующей рекомбинацией с протием.

После завершения облучения несфокусированным пучком, то есть после того, когда перестал регистрироваться отклик на лазерное облучение, был проведен анализ остаточного содержания дейтерия в пленке методом классического ТДС. Нагрев производился электронным пучком с энергией электронов 1 кэВ. Полученный ТДС-спектр представлен на рис. 7.

Сравнивая с термодесорбционными опытами, проведенными для референтных образцов без предварительного лазерного облучения, можно утверждать, что обеднение поверхности за счет лазерно-индуцированной десорбции не сказалось сколь-либо существенно на спектре ТДС Ti-D пленки. Максимум десорбции наблюдается при 700 К, характерный для десорбции изотопов водорода из Ti-D пленок после контакта с атмосферным воздухом. При этом по сравнению с лазерно-индуцированной десорбцией, за счет большего потока мощности в пучке электронов и нагрева как образца, так и его держателя, фон сигнала 2-ой массы был существенно (почти на порядок) при ТДС-анализе.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Проведено исследование влияния фокусировки лазерного излучения на чувствительность метода лазерно-индуцированной десорбции к изотопам водорода. Исследование проводилось на Ti-D соосажденных слоях с большой концентрацией дейтерия.

Было показано, что лазерно-индуцированная десорбция применима для детектирования изотопов водорода в соосажденных слоях микрометровых толщин. С ростом плотности мощности излучения резко возрастает чувствительность метода. При этом даже одновременное многократное облучение поверхности не приводит к существен-

ному истощению содержания изотопов водорода в изучаемых слоях, позволяя проводить их дальнейший ex-situ анализ.

Отмечено, что как толщина изучаемого слоя, так и фокусировка излучения оказывают существенное влияние на наблюдаемое соотношение компонентов десорбции. С ростом концентрации излучения растет выход сигнала 3-ей массы, вероятнее всего, из-за увеличения выхода атомарного дейтерия из пленок с его последующей рекомбинацией на стенках установки с атомами протия, либо же за счет рекомбинации дейтерия с протием на поверхности образца под действием облучения. Для тонких пленок наблюдалось отсутствие существенного выхода D₂ при уже существенном выходе HD. Таким образом, нельзя судить о наличии тяжелых изотопов водорода в соосажденных слоях только по наблюдаемому сигналу 4-ой атомной массы, необходимо регистрировать и 3-ю атомную массу, особенно для тонких слоев.

БЛАГОДАРНОСТИ

Работа выполнена при поддержке гранта Российского научного фонда № 17-12-01575.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ/REFERENCES

1. Shimada M. et al. // J. Nucl. Mater. Netherlands. 2013. V. 438. P. S996–S1000.
2. Zakharov L.E. // Nucl. Fusion. 2019. V. 59. No. 9. P. 096008.
3. Ryabtsev S.A. et al. // Phys. Scr. 2017. V. 170. P. 014016.
4. Mayer M. et al. // J. Nucl. Mater. 2013. V. 438. P. S780–S783.
5. Isaev N.V. et al. // Instrum. Exp. Tech. 2014. V. 57. No. 1. P. 82–85.
6. Isaev N.V., Chmil' A.I., Shustin E.G. // Plasma Phys. Rep. 2004. V. 30. No. 3. P. 263–268.
7. Shustin E.G. et al. // Vacuum. 2009. V. 83. No. 11. P. 1350–1354.
8. Krat S.A. et al. // Vacuum. 2014. V. 105. P. 111–114.

Investigation of the Laser Radiation Focusing Effect on the Sensitivity of Analysis of the Hydrogen Isotope Content in Plasma-Deposited Layers by Laser-Induced Desorption

S. A. Krat^{1,*}, A. P. Kharina¹, I. A. Sorokin^{1, 2}, V. A. Kostyushin¹, E. D. Vovchenko¹, and V. A. Kurnaev¹

¹ National Research Nuclear University MEPhI (Moscow Engineering Physics Institute), Moscow, 115409 Russia

² Fryazino Branch, Kotelnikov Institute of Radioengineering and Electronics, Russian Academy of Sciences, Fryazino, Moscow oblast, 141120 Russia

*e-mail: SAKrat@mephi.ru

Received December 12, 2019; revised December 16, 2019; accepted December 16, 2019

The efficiency of the laser-induced desorption method as a detector of hydrogen isotopes under pulsed laser irradiation (wavelength 1064 nm, 100 mJ, duration 10 ns) for different power densities of incident radiation

on deuterium-saturated thin titanium films was investigated. When the power flow density increases by 16 times, the intensity of the thermal desorption peak increases by more than 2 orders of magnitude. Longterm repeated irradiation of the surface does not lead to significant depletion of the content of hydrogen isotopes in the studied layers, allowing their further ex-situ analysis.

Keywords: laser-induced desorption, hydrogen accumulation, measurement techniques, thermal desorption spectroscopy