# ВЛИЯНИЕ ВЫСОКОТЕМПЕРАТУРНЫХ ИМПУЛЬСОВ ПЛАЗМЕННЫХ ПОТОКОВ НА СТРУКТУРУ И ОПТИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА САПФИРА

П.В.Горшков<sup>1,2</sup>, И.В.Боровицкая<sup>1</sup>, Л.И.Иванов<sup>1</sup>, В.Н.Колокольцев<sup>1</sup>, Г.Г.Бондаренко<sup>3,4</sup>

<sup>1</sup> Институт металлургии и материаловедения им. А.А.Байкова РАН; <sup>2</sup> Физический институт им. ПН.Лебедева РАН; <sup>3</sup>Московский государственный институт электроники и математики (технический университет); <sup>4</sup> Научно-исследовательский институт перспективных материалов и технологий Московского государственного института электроники и математики (технического университета) E-mail: symp@imet.ac.ru; bondarenko gg@rambler.ru

Сапфир широко используется в системах термоядерного синтеза и в космической технике в качестве материала окон для ввода и вывода лазерного и светового излучения. В условиях эксплуатации сапфир часто подвергается внешнему воздействию, например, при срыве плазмы в термоядерных установках или микрометеоритов и солнечной плазмы — в космических аппаратах. Во многих случаях на его поверхность наносятся диэлектрические металлические пленки. Например, различные И В электронной промышленности при изготовлении микросхем на подложки из лейкосапфира наносят тонкие слои меди, при этом используются химические, магнетронные, плазменные, ионно-лучевые и прочие методы осаждения. Целью работы было исследование изменения состава и морфологии поверхности сапфира после воздействия плотной высокотемпературной аргоновой плазмы, получаемой на установке «Плазменный Фокус», а также изучение оптических свойств поверхности после данной обработки.

## Методика эксперимента

В экспериментах использовались шлифованные и полированные пластины лейкосапфира, вырезанные из монокристаллических образцов. Импульсное облучение высокотемпературной плазмой производилось на установке Фокус "Тюльпан" (ПФ-4) Физического Плазменный института ИM. позволяет получать П.Н.Лебедева PAH [1], которая кумулятивные плазменные струи с ионной плотностью ~10<sup>18</sup> см<sup>-3</sup>. Скорость струй зависит от геометрии электродов, газового состава в разрядной камере, а также расстояния между анодом и образцом, и в нашем случае составляла (2-4)·10<sup>7</sup> см/с. Время воздействия плазменного импульса на образец не превышало 50 нс. Температура плазмы достигала 1 миллиона градусов, что приводило к большим градиентам температуры в облучаемом образце. Разрядная камера заполнялась дейтерием или аргоном до давления 1-2,5 Торр, запасенная в установке энергия достигала ~4 кДж, плотность потока энергии плазменного импульса на мишени составляла от 10<sup>8</sup> до 10<sup>10</sup> Вт/см<sup>2</sup>, число импульсов плазмы — от 10 до 40, интервал между импульсами — ~3 мин. Осаждение медной пленки на подложки происходило за счет испарения материала с поверхности анода, выполненного из меди и имеющего вставку из псевдосплава W-Cu.

Коэффициент пропускания  $\tau$  измерялся на спектрофотометре СФ-46. Диаметр диафрагмы, ограничивающей размер падающего на образец луча, был равен 5,0 и 1,0 мм. Спектры пропускания пленок измерялись в интервале длин волн 0,25-0,5 мкм, то есть в области наибольшего изменения коэффициентов пропускания чистого сапфира [2]. Абсолютная погрешность измерения длины волны на спектрофотометре СФ-46 составляла ±1 нм, относительная погрешность измерения коэффициентов пропускания не превышала ±1%. Определение коэффициента отражения *r* по измеренным коэффициентам пропускания проводилось по формуле для плоскопараллельной пластинки [3]

$$= (1-r)^2 \exp(-kd) \tag{1}$$

где *г* — коэффициент отражения плоскопараллельной пластинки; *k* — натуральный показатель поглощения; *d* — толщина пластинки.

τ

# Результаты и их обсуждение

Образцы располагались относительно направления разлета пинча таким образом, что на торцевую поверхность образцов воздействовал прямой плазменный пучок, а на боковую — скользящий. Как видно из рис.1, перпендикулярно воздействие поверхности приводит плазменное к изменению морфологии поверхности монокристаллического сапфира, на которой появляются черные круглые пятна (кратеры) и тонкие трещины, распространяющиеся по поверхности, в основном, от кратеров. Исследования с помощью атомно-силового микроскопа (АСМ) показали, что поверхность сапфира после плазменного воздействия характеризуется сложным микрорельефом, образованным различными выступами и конусами. Толщина трещин, образование которых связано с релаксацией внутренних напряжений при сверхбыстром охлаждении тонкого поверхностного слоя, не превышала 150 нм. Поверхность образца после воздействия плазмы приобретает металлический блеск, что может свидетельствовать о разложении сапфира (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) при воздействии аргоновой плазмы в условиях высокого давления и высоких температур. Так, например, известно [4], что в обычных условиях при температурах выше температуры плавления Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (2046°C) жидкий оксид алюминия переходит в газовую фазу, диссоциируя на Al и O. Однако в условиях импульсного нагрева до ~3000°С и при возникновении ударных волн с давлением на фронте волны ~10<sup>11</sup> Па процесс разложения оксида может происходить иным образом. Таким образом, сам факт появления металлического блеска может рассматриваться как свидетельство разложения сапфира и появления в поверхностном слое атомов алюминия или их коагулированных образований.



Рис. 1 Поверхность сапфира после воздействия 20 импульсов плазмы под углом 90°: а — сканирующая электронная микроскопия; б — атомно-силовая микроскопия.

На рис.2 представлена структура кратера на торцевой поверхности пластинки сапфира. Как видно, кратер представляет собой коническое углубление (~2 мкм), дно которого имеет вид поверхности неправильной формы. Такую форму кратера можно связать с накоплением в "холодном" глубоком слое газовых атомов, образующихся при диссоциации оксида алюминия, и последующим выбросом газа на поверхность при охлаждении. Следует отметить, что при этом не формируется четко выраженный бруствер. Релаксация возникающих напряжений при выходе газовых примесей может быть причиной возникновения поверхностных трещин. Попытки обнаружить (с помощью сканирующего электронного микроскопа с рентгеновским микроанализатором) на торцевой поверхности облученного сапфира или в зоне кратера посторонние элементы, которые могли попасть в пинч (W, Cu и др.) не привели к успеху. На поверхности сапфира после воздействия плазменного импульса под углом 90° присутствует только оксид алюминия. Причиной отсутствия на поверхности следов, например, алюминия или меди, может быть их испарение, так как температура кипения Al и Cu (2464 и 2564°С соответственно) меньше максимальной температуры поверхности сапфира в момент плазменного воздействия.

Однако характер взаимодействия импульсной плазмы сапфиром с меняется при уменьшении угла существенно воздействия плазмы на воздействии скользящего поверхность. При плазменного пучка на поверхности появляется полупрозрачная на просвет пленка; указывает на отсутствие сплошности полупрозрачность пленки при напылении металла либо на ее малую толщину, которая меньше длины волны света в оптическом диапазоне (0,4-0,76 мкм).



Рис. 2 Кратер, образованный на торцевой поверхности образца сапфира после воздействия импульсной плазмы. АСМ.

На рис.3 представлена структура поверхности сапфира (зона, прилегающая к торцу образца) после удара импульса аргоновой плазмы под углом меньше 90°, а в табл.1 — результаты микрорентгеноспектрального анализа в отдельных точках на рис.3. На поверхности видны выделения меди Данные микрорентгеноспектрального размера. локального различного анализа указывают на присутствие в спектре оксида алюминия, что может быть связано с тем, что размер сферических выделений меди меньше размера анализируемой области. Также на поверхности сапфира видны разнородные "выбоины" и кратеры. На более удаленных от торца участках боковая поверхность образца покрывается мелкими сферическими выделениями (рис.4), которые придают ей металлический блеск. Образование этих выделений связано с конденсацией атомов меди, находящихся в плазме, на холодной поверхности сапфира и последующей их коагуляцией за счет поверхностной диффузии. Как показали исследования на АСМ, ЭТИ выделения должны иметь хорошую адгезию с поверхностью (рис.4 $\delta$ ).



Рис.3.Микроструктура поверхности сапфира после воздействия импульсной плазмы (угол между плазменным пучком и поверхностью образца <<90°). Зона вблизи края образца. Химический состав поверхности в точках 1 – 4 приведен в таблице 1.

## Таблица 1.

Химический состав в отдельных точках поверхности сапфира после воздействия импульсной плазмы (угол между плазменным пучком и поверхностью образия «200°). Тошки отмещены на рис 3

поверхностью образца <<90 ). Точки отмечены на рис.5											
Точка 1			Точка 2			Точка 3			Точка 4		
Эл	Macc.	Ат.%	Эл	Macc	Ат%	Эл	Mac.	Ат%	Эл	Mac.	
-т	%		<b>-</b> T	%		<b>-</b> T	%		-	%	Ат%
									Т		
0	6.60	20.22	0	6.10	19.13	0	44.60	57.86	0	50.42	
											63.25
Al	7.41	13.46	Al	6.29	11.69	Al	54.32	41.79	Al	49.26	
											36.64
Cu	85.99	66.32	Cu	87.61	69.18	Cu	1.08*	0.35*	Cu	0.32*	
											0.10*



б

Рис. 4. Поверхность сапфира после воздействия импульсной плазмы (угол между плазменным пучком и поверхностью образца <<90°). Зона вдали от края образца. а — сканирующая электронная микроскопия; б — атомно-силовая микроскопия.

a

Результаты измерений коэффициентов пропускания  $\tau$  и отражения *r* в спектральном диапазоне 0,25-05 мкм исходной пластинки лейкосапфира толщиной 1,0 мм приведены в табл.2. Измерения проводились при освещении средней части образца лучом света диаметром 5,0 мм. Коэффициент отражения рассчитывался по упрощенной формуле без учета поглощения света образцом. Таким же образом проводилось измерение коэффициента пропускания подложки лейкосапфира с напыленной медной пленкой (т.е. после воздействия скользящего плазменного пучка). Как видно из данных, представленных в табл.2, после напыления пленки коэффициент пропускания в диапазоне длин волн 0,25-0,55 мкм снизился в ~10 раз, дисперсия отсутствует, а коэффициента отражения равен ~71,5%. В табл.2 приведены также значения коэффициента отражения лейкосапфира, рассчитанные по литературным данным [5,6]. Вычисление *r* проводилось по формуле Френеля для нормального падения луча:

$$r = \frac{(n-1)^2}{(n+1)^2}$$

где n — показатель преломления при данной длине волны. Расчеты проводились при значениях  $\lambda=0,4$  мкм,  $n_0=1,7862$ , обыкновенный луч [6];  $\lambda=1,06$  мкм,  $n_0=1,75449$ , обыкновенный луч [5];  $\lambda=1,06$  мкм,  $n_e=1,74663$  необыкновенный луч [5].

Так как измерения при широком луче (диаметр 5,0 мм) не привели к обнаружению различий в значениях коэффициента пропускания пленки на краях и в середине образца, было проведено оптическое зондирование поверхности пленки вдоль средней линии лучом света диаметром 1,0 мм. Результаты измерений тна длине волны 0,4 мкм и вычисленные по этим данным значения r приведены в табл.3. Как видно, некоторые различия в значениях т и r пленки в указанных трех точках существуют.

Таблица 2

1,0 mm, 0numemp ny 40 5,0 mm)							
<b>N</b> C-	Исх	одный о	Медная пленка на				
JN⊇			лейкосапфире				
п/п	λ,	τ, %	<i>r</i> , %	Примечание	λ,	τ,	r,
11/ 11	МКМ				МКМ	%	%
1	0,25	70,1	16,3		0,25	8,0	71,7
2	0,28	71,0	15,7		0,28	8,0	71,7
3	0,30	75,1	13,3		0,30	8,1	71,5
4	0,35	78,2	11,6		0,35	8,1	71,5
5	0,40	80,8	10,1		0,40	8,1	71,5
6	0,45	82,0	9,4		0,45	8,0	71,7
7	0,48	82,8	9,0		0,48	8,1	71,5
8	0,50	83,2	8,8		0,50	8,1	71,5
9	0,52	83,2	8,8		0,52	8,1	71,7
10	0,55	84,3	8,2		0,55	8,0	71,7
11	1,06	-	7,5	[4]			
				обыкно-			
				венный луч			
12	1,06	-	7,4	[4]			
				необыкно-			
				венный луч			
13	0,40	-	8,0	[5]			
				обыкно-			
				венный луч			

Коэффициенты пропускания (т) и отражения (r) пластинки лейкосапфира в исходном состоянии и после нанесения медной пленки (толщина пластинки 10 мм: диаметр луча 50 мм)

Таблица 3

Коэффициенты пропускания (т) и отражения (r) медной пленки на лейкосапфире (толщина пластинки 1,0 мм; диаметр луча Ø1,0 мм)

N⁰	λ,	τ, %	<i>r</i> , %	Примечание
п/п	МКМ			
1	0,4	80,80	10,1	Исходный лейкосаприр
2	0,4	8,88	70,2	Область первоначального
				напыления (вход плазменной
				струи)
3	0,4	8,08	71,6	Срединная область пленки
4	0,4	8,80	70,3	Конечная область пленки
5	0,3	_	25	Литературные данные для меди
6	0,5	—	44	[8], 300 K
7	0,6	_	72	

Измеренные спектры пропускания и отражения исходного лейкосапфира в диапазоне длин волн 0,25-0,55 мкм в целом согласуются с литературными данными [3,6,7]. Однако вычисленные по измеренным коэффициентам пропускания значения коэффициента отражения медных пленок существенно отличаются от литературных данных для чистой меди (табл.3). Вероятно, это различие связано с тем, что в нашем случае сферические капли металла покрыты тонким слоем двуокиси алюминия, что приводит к более сложному рассеянию света. Кроме того, как видно из рис.3,4, между сферическими каплями металла в аморфной фазе Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> распределены мелкодисперсные которые могут существенно частицы металлов, также влиять на коэффициенты пропускания и отражения. Необходимо отметить, что в напыленных пленках вычисление коэффициента отражения без учета поглощения и рассеяния света, по-видимому, является некорректным. Отчасти на это указывают и результаты работ [9,10], где исследовалось диффузное отражение порошков  $TiO_2$  и  $Ba_{1-x}Sr_xTiO_3$ . Коэффициенты диффузного отражения близки к нашим значениям и также слабо меняются в спектральном диапазоне ~0,45~0,6 мкм.

#### Выводы

1. Показано, что эффект воздействия плазмы на сапфир зависит от угла падения плазмы. При нормальном падении плазменного пучка на поверхности образуются поры и кратеры, возникновение которых связано с диссоциацией оксида алюминия, происходящей с выделением кислорода. При движении плазмы параллельно поверхности на ней образуются сферические выделения меди, попадающей в плазму из анода установки Плазменный Фокус, придающие металлический блеск этой поверхности.

2. Измеренные коэффициенты отражения медной пленки в диапазоне длин волн 0,25-0,55 мкм оказались значительно выше, чем для чистой меди. Возможно, что причиной указанного различия является присутствие тонких слоев  $Al_2O_3$  на металлических каплях, а также изменение характера рассеяния и пропускания света в аморфной фазе двуокиси алюминия, связанное с присутствием в ней мелкодисперсных частиц металла.

- L.I. Ivanov, A.I. Dedurin, I.V. Borovitskaya, O.N. Krokhin, V.Ya. Nikulin, S.N. Polukhin, A.A.Tikhomirov, A.S. Fedotov. Plasma focus installations as a tool for study of the interaction of high power plasma streams with condensed matter. Problems of atomic science and technology, ser.8: Plasma phycics, 2002, No.5, p.83-85.
- 2. M.Griot. Refractive index of sapphire. Optics Guide. 1980, 4:3-15.
- 3. В.А. Афанасьев. Оптические измерения. М.: Высшая школа, 1981, 229 с.
- 4. Е.К. Казенас, Ю.В. Цветков Испарение оксидов. М.: Наука, 1997, 543 с.
- 5. А.А. Аппен. Химия стекла. Л.: 1974. 348 с.
- 6. М.П. Шаскольская. Акустические кристаллы. М., ФМЛ, 1982. 589 с.
- 7. V.Gribkov, L.Ivanov, S.Maslyaev, V.Pimenov, M.Sadowski et al. On the nature of changes in the optical characterization produced in sapphire on its irradiation with a pulsed powerful stream of hydrogen ions. Nukleonika, 2004, v.49, No.2, p.43-49.
- 8. Физические величины. Справочник. Ред. И.С. Григорьев, Е.З.Мейлихов. М.: Энергоиздат, 1991, 1231 с.
- 9. Л.Г.Косицын,М.М.Михайлов, Н.Я. Кузнецов, М.И. Дворецкий. Установка для исследования спектров диффузного отражения и люминесценции твердых тел в вакууме. ПТЭ, 1985, №4, с.178-180.
- 10. М.М. Михайлов, А.Н. Соколовский. Влияние температуры синтеза на концентрацию и спектры диффузного отражения соединений Ва<sub>1-x</sub>Sr<sub>x</sub>TiO<sub>3</sub>. ФХОМ, 2008, №4, с. 31-35.