

(7) и (8), штрихпунктирная — численному интегрированию уравнения Пуассона. Результаты натурального эксперимента отмечены кружками. Согласно численному эксперименту, критическая длина резонатора  $L_0 = 1.8$  см, а по формуле (4) она равна 2 см. При  $L > L_0$  инжектируемый ток становится больше предельного, образуется ВК и происходит резкое уменьшение транспортируемого тока. Из рис. 2 можно сделать вывод о хорошем совпадении результатов численного и натурального экспериментов, а также о качественном и количественном соответствии с ними аналитических результатов.

Таким образом, в настоящей работе получены аналитические соотношения, определяющие предельный ток пучка в волноводе конечной длины и критическую длину волновода, а при инжекции сверхпредельного тока — основные характеристики распространяющегося пучка: расположение виртуального катода, толщина пучка и величина транспортируемого тока. Показано, что транспортируемый ток может превышать предельный. Точность аналитических соотношений подтверждена сравнением с результатами натуральных и численных экспериментов.

#### Список литературы

- [1] Богданкевич Л. С., Рухадзе А. А. // УФН. 1971. Т. 103. № 4. С. 609—640.
- [2] Воронин В. С., Зозуля Ю. Т., Лебедев А. Н. // ЖТФ, 1972. Т. 42. Вып. 3. С. 546—552.
- [3] Федотов А. В., Шкварунец А. Г. // Физика плазмы. 1987. Т. 13. № 9. С. 1068—1074.

Институт высоких температур  
АН СССР  
Москва

Поступило в Редакцию  
13 марта 1988 г.

05;12

Журнал технической физики, т. 59, в. 9, 1989

### ТЕРМИЧЕСКАЯ СТАБИЛЬНОСТЬ МНОГОСЛОЙНЫХ ИНТЕРФЕРЕНЦИОННЫХ СИСТЕМ ТИТАН—БЕРИЛЛИЙ

А. В. Антонов, Н. В. Галанов, А. И. Исаков, В. В. Кондратенко,  
В. И. Микеров, О. В. Польцева, А. Г. Пономаренко, Н. П. Сапошников,  
В. Б. Сиврюк, В. А. Тукарев, А. И. Федоренко

Перспективность применения многослойных интерференционных систем в качестве монохроматоров, поляризаторов, зеркал и других элементов нейтронной оптики показана на целом ряде пар материалов, различающихся амплитудами рассеяния для нейтронов: Fe—Ag [1],  $^{58}\text{Ni}$ — $^{62}\text{Ni}$  [2], Fe—Ge [3], Ti—Be [4] и др. Наибольший интерес представляют МИС с малыми периодами  $\leq 10$  нм. Малая толщина слоев и высокие значения градиентов химических потенциалов элементов на границах раздела пленок делают малопериодные МИС весьма уязвимыми к процессам деградации их структуры и оптических характеристик в результате диффузионного взаимодействия слоев друг с другом и с окружающей средой. Поэтому решение вопроса об оптимальном выборе пары материалов для изготовления элементов реальных нейтронных приборов требует знания временной и термической стабильности МИС в различных средах и в зависимости от геометрии и структуры многослойных периодических систем.

Целью данной работы явилось изучение термической стабильности структуры, фазового состава и коэффициента отражения холодных нейтронов многослойных интерференционных систем титан—бериллий с периодом  $\approx 15$  нм и числом пар слоев 100.

Методика приготовления МИС титан—бериллий описана в [4]. В исходном состоянии МИС состояли из чередующихся поликристаллических слоев титана и бериллия толщиной  $\sim 7$  и  $\sim 8$  нм соответственно. Размер зерен Ti и Be в плоскости слоев не превышал  $\sim 2$  и  $\sim 10$  нм соответственно, а в перпендикулярном направлении он равнялся толщине слоев. Слои Ti обладали аксиальной текстурой  $\langle 001 \rangle$  с угловой разориентацией  $\pm 10$ — $15^\circ$ , в то время как в слоях Be наблюдались две слабо выраженные текстуры  $\langle 001 \rangle$  и  $\langle 100 \rangle$ . Анализ химического состава МИС с помощью обратного резерфордского рассеяния протонов выявил присутствие кислорода в количестве до  $\sim 3$  ат.%, вероятнее всего, растворенного в титановых слоях, согласно данным [5].

Отжиг МИС приводился в вакууме  $10^{-3}$  Па последовательно при температурах 473, 573, 623 и 773 К в течение  $10^3$ — $10^5$  с. После каждой термообработки измерялась интенсивность  $I$  нейтронов, отраженных от МИС в зеркальном направлении. Для этого на МИС направлялся пучок холодных нейтронов с  $\lambda \sim 1$  нм и  $\Delta\lambda/\lambda \approx 50\%$  ( $\Delta\lambda/\lambda$  для отраженного пучка  $\approx 20\%$ ). Геометрия эксперимента обеспечивала регистрацию пучка с угловой шириной на полувысоте  $\sim 10'$ . Полная угловая ширина отраженного пучка в таких измерениях, как это показано в [6], значительно больше из-за диффузного рассеяния нейтронов. Число периодов в МИС было 100. Интенсивность счета нейтронов на неотожженных МИС и фоновый счет в измерениях составляли соответственно  $\sim 160$  и  $\sim 0.1$  н/с. Структура и фазовый состав изучались методами электронной микроскопии на МИС с таким же периодом, но содержащих только 5 пар слоев, которые были приготовлены и термообработаны совместно со 100-периодными МИС. При числе пар слоев больше пяти МИС с указанным периодом были уже недостаточно прозрачными для электронов с энергией 100 кэВ, чтобы проводить качественные исследования их структуры и фазового состава.

Относительное изменение интенсивности  $I$  отраженных нейтронов по сравнению с ее исходным уровнем  $I_0$  в зависимости от времени отжига при ступенчатом увеличении тем-

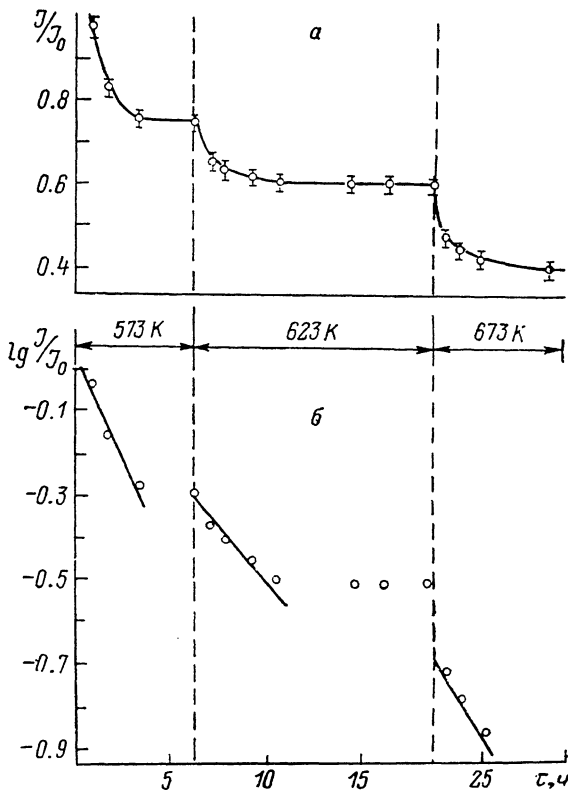


Рис. 1. Относительное изменение интенсивности отраженных нейтронов в зависимости от времени выдержки при ступенчатом изменении температуры.

$a$  — в координатах  $(I/I_0) - \tau$ ,  $b$  — в координатах  $\lg(I/I_0) - \tau$ .

пературы  $T$  представлено на рис. 1,  $a, b$ . Существенное снижение отношения  $I/I_0$  наблюдается при отжиге МИС при температурах выше 500 К. Так, если одночасовый отжиг МИС при 423 К снижает  $I/I_0$  на 3 %, то при 573 К — уже на 15 %. Характерной особенностью зависимости  $I/I_0$  ( $\tau$ ) при постоянных температурах отжига 573, 623 и 673 К является сравнительно быстрое уменьшение  $I/I_0$  в течение первых нескольких часов, после чего падение замедляется и наступала стабилизация отражательной способности МИС на практически постоянном уровне (рис. 1,  $a$ ). Уменьшение  $I$  свидетельствует о деградации МИС, т. е. об усреднении амплитуды рассеяния нейтронов в пределах периода  $d$  многослойной композиции вследствие либо увеличения средней высоты  $\sigma$  отклонения реальных поверхностей раздела слоев от геометрической плоскости, либо интердиффузионного перемешивания сильнорассеивающего и слаборассеивающего нейтроны материалов в прилегающих к границе раздела слоев областях толщиной  $\sigma$ . Согласно [7],

$$\frac{I}{I_0} = \exp \left[ - \left( 2\pi m \frac{\sigma}{a} \right)^2 \right],$$

где  $m$  — порядок отражения нейтронов.

В случаях, когда развитие рельефа поверхностей раздела слоев и перемешивание материалов обусловлено атомной диффузией, величина  $\sigma^2$  совпадает или тесно связана со среднеквадратичным смещением атомов диффузанта за время отжига. Тогда по величине  $(\sigma \ln(I/I_0))/\partial \tau$  можно определить интегральный коэффициент  $D$  диффузии при температуре отжига МИС, используя либо параболический закон диффузии  $\sigma^2 = D\tau$ , либо разработанную Хиллиардом с соавторами методику [8], согласно которой  $D = -(1/2B^2) (\sigma \ln I/I_0 / \partial \tau)$ , где  $B$  — дисперсионное соотношение.

Анализ зависимости  $I/I_0$  ( $\tau$ ) в координатах  $\ln(I/I_0) - \tau$  (рис. 1, б) показал, что диффузия по параболическому закону с постоянным  $D$  наблюдается только в начале отжига МИС титан—бериллий при 573, 623 и 673 К. По истечении нескольких часов отжига направленный диффузионный массоперенос в композициях Ti—Be постепенно затухал вследствие уменьшения  $D$ . Оценки коэффициентов диффузии в системе Ti—Be по соотношению (1) и по методике [8] дали совпадающие величины  $D \approx 10^{-18} - 10^{-19}$  см<sup>2</sup>/с на начальных участках отжига при  $T = 573 - 673$  К.

Наблюдаемое затухание изменения  $I/I_0$  при изотермической выдержке Ti—Be многослойных композиций при  $T = 573 - 673$  К (рис. 1) может означать, что на начальных стадиях отжига массоперенос протекает преимущественно по путям легкой диффузии с ограниченным временем существования. По истечении нескольких часов отжига пути ускоренной диффузии «выходят из игры», что сопровождается уменьшением  $D$  и замедлением массопереноса в системе Ti—Be. Повышение температуры отжига включает новые пути ускоренного массопереноса, которые также, насыщаясь диффузантом или разрушаясь, прекращают свое существование через несколько часов.

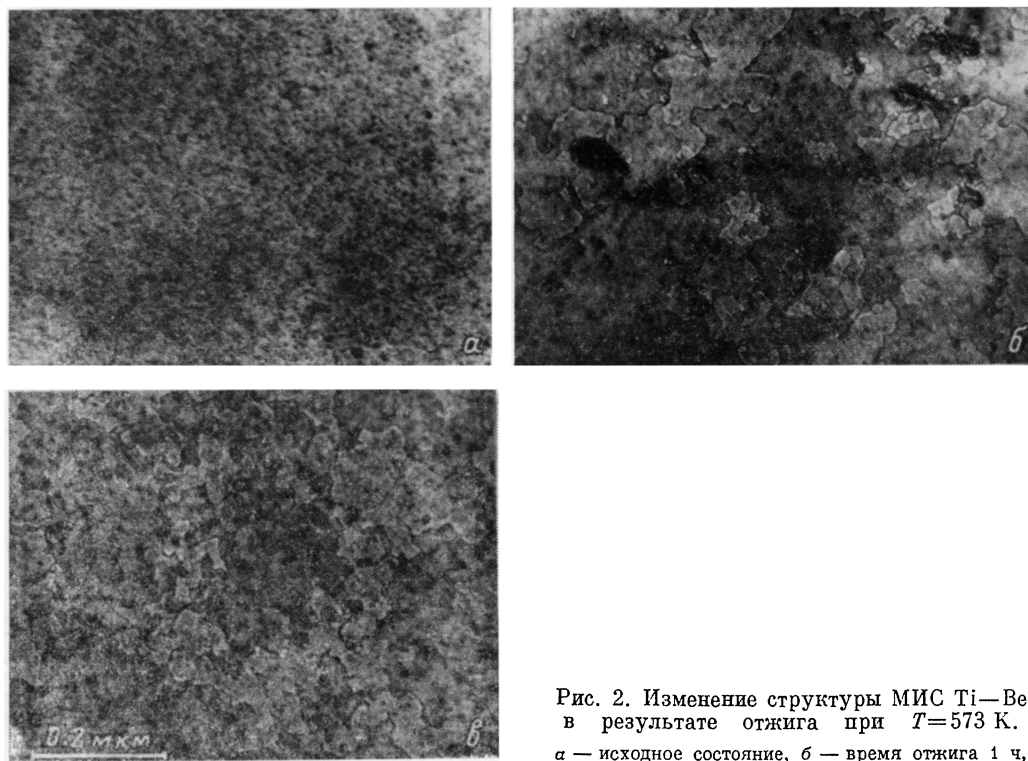


Рис. 2. Изменение структуры МИС Ti—Be в результате отжига при  $T = 573$  К.  
а — исходное состояние, б — время отжига 1 ч,  
в — 10 ч.

Электронно-микроскопическое исследование МИС на разных стадиях отжига показало, что падение  $I/I_0$  сопровождалось изменениями их фазового состава и морфологии вследствие прежде всего окисления бериллия и титана. Как видно из таблицы и на рис. 2, повышение температуры и длительности отжигов МИС приводило к появлению возрастающих количеств BeO, TiO и TiO<sub>2</sub> за счет убывания объемов металлических Be и Ti, которые практически полностью исчезали после одночасового отжига при 773 К. Единственным свидетельством интердиффузионного перемешивания металлических слоев Be и Ti было появление интерметаллида TiBe<sub>12</sub> после термообработки при 773 К.

Анализ электронно-микроскопических изображений МИС выявил неоднородный характер окисления слоев бериллия и титана как по площади пленок, так и по времени их отжига. Окисление слоев протекало на локализованных участках-островках (рис. 2), интенсивное разрастание которых на протяжении первых нескольких часов отжига при постоянной температуре сменялось стабилизацией их размеров, после чего морфология МИС оставалась практически неизменной до повышения температуры. Такое поведение островков — окислов бериллия и титана хорошо согласуется с ходом зависимости  $I/I_0$  ( $\tau$ ) (рис. 1) и с гипотезой о преобладании массопереноса в МИС Ti—Be по путям ускоренной диффузии ограниченной

мощности (с ограниченным временем жизни). Равномерное окисление слоев Ti до TiO<sub>2</sub>, как показывают расчеты, не может объяснить наблюдаемое изменение величины  $I/I_0$  ( $\tau$ ). Ответственные за деградацию МИС Ti—Be интегральные коэффициенты диффузии оказались на несколько порядков выше известных из литературы [9] значений парциальных коэффициентов диффузии титана и кислорода в монокристаллическом TiO<sub>2</sub> ( $10^{-22}$ — $10^{-25}$  см<sup>2</sup>/с), Be ( $10^{-23}$ — $10^{-26}$  см<sup>2</sup>/с) и кислорода ( $10^{-27}$ — $10^{-31}$  см<sup>2</sup>/с) в монокристаллическом BeO и кислорода ( $10^{-20}$ — $10^{-23}$  см<sup>2</sup>/с) в поликристаллическом BeO при 573—673 К. Это различие значений

**Фазовый состав многослойных периодических систем  
Ti—Be в исходном состоянии и после термообработки  
при 573—773 К**

Температура, К	Время отжига, ч	Фазы
293 (исходное состояние)	—	Ti, Be
573	1—40	Ti, Be, BeO, TiO <sub>2</sub> (следы)
673	1—40	Ti, Be, TiO, TiO <sub>2</sub> , BeO
773	1	TiO, TiO <sub>2</sub> , BeO, TiBe <sub>12</sub>

в тонкопленочных МИС и массивных BeO и TiO<sub>2</sub> также указывает на преимущественную диффузию в многослойных композициях Ti—Be по путям ускоренного массопереноса типа границ зерен или дислокаций.

Таким образом, установлено, что деградация отражательной способности многослойных интерференционных систем Ti—Be в процессе отжига при 573—773 К обусловлена окислением Ti и Be. Превращение Be и Ti в BeO и TiO<sub>2</sub> сопровождается увеличением объема исходного металла в 1.7 и 1.9 раза [10]. При островковом характере окисления слоев бериллия и титана сопровождающие фазовые превращения объемные изменения неизбежно вызовут развитие рельефа поверхностей раздела слоев, нарушение планарности слоев и, как следствие, снижение интенсивности  $I$  когерентно отраженных нейтронов. При температурах отжига выше  $\approx 750$  К заметный вклад в деградацию МИС будет вносить и диффузионное взаимодействие металлических слоев бериллия и титана с образованием интерметаллидов. Проведенные исследования показали, что рабочие температуры многослойных интерференционных систем Ti—Be с периодом 10—20 нм не должны превышать 500 К. В случае МИС с периодом  $\leq 10$  нм и жесткими требованиями к стабильности их отражательной способности рабочие температуры необходимо ограничить до 300—400 К.

**Список литературы**

- [1] Казерашвили В. Я., Щebetов А. Ф., Сороко З. И. и др. Препринт ЛИЯФ. № 1062. Л., 1985. 23 с.
- [2] Антонов А. В., Галанов Н. В., Жовтанецкий О. И. Препринт ФИАН СССР. № 31. М., 1984. 14 с.
- [3] Saxena A. M., Majkrzak C. F. // Proc. XXXII Symp. Biol. Neutron Optics with Multi-layer Monochromators. Brookhaven, 1984. P. 143—157.
- [4] Антонов А. В., Борисова С. С., Исаков А. И. и др. // ЖТФ. 1986. Т. 56. Вып. 6. С. 1241—1244.
- [5] Технология тонких пленок / Под ред. Х. Майселла, Р. М. Глэнга. М.: Сов. радио, 1977. Т. 2.
- [6] Антонов А. В., Житник И. А., Исаков А. И. и др. // Письма в ЖЭТФ. 1986. Т. 44. Вып. 7. С. 347—349.
- [7] Barbee T. W. Jr. // Opt. Engineering. 1986. Vol. 25. N 8. P. 898—915.
- [8] Cook H. E., Hillard Y. E. // J. Appl. Phys. 1969. Vol. 40. N 15. P. 2191—2198.
- [9] Кофстад П. Отклонение от стехиометрии, диффузия и электропроводность в простых оксидах металлов. М.: Мир., 1975. 396 с.
- [10] Окисление металлов / Под ред. Ж. Бенара. М.: Металлургия, 1968. Т. 2. 499 с.

Харьковский политехнический институт  
им. В. И. Ленина

Поступило в Редакцию  
22 июля 1987 г.  
В окончательной редакции  
19 апреля 1988 г.