

УТВЕРЖДАЮ:

Директор
ФГБУН ИЭФ УрО РАН

к. ф. – м. н.

С.А. Чайковский

С.А. Чайковский

« 16 » *ноября* 2016 г.

ОТЗЫВ

ведущей организации Федеральное государственное бюджетное учреждение науки Институт электрофизики Уральского отделения Российской академии наук (ИЭФ УрО РАН) на диссертационную работу Золотухина Дениса Борисовича **«Параметры и характеристики пучковой плазмы, генерируемой в форвакуумной области давлений электронным источником с плазменным катодом»**, представленной на соискание ученой степени кандидата физико-математических наук по специальности 01.04.04 – физическая электроника

Актуальность

Наряду с широко используемым методом генерации низкотемпературной плазмы с помощью газовых разрядов для этой цели используются и электронные пучки. Как и электрический разряд, электронный пучок ионизирует, возбуждает и диссоциирует частицы в газе. Однако соотношения концентрации ионизированных, возбужденных и атомарных частиц в газоразрядной и пучковой плазмах существенно отличаются. Если электронный пучок с энергией свыше 100 эВ преимущественно ионизирует газ, то в газоразрядной плазме с высокой концентрацией низкоэнергетических электронов преобладают процессы возбуждения и диссоциации. Это обуславливает различие в протекании процессов взаимодействия частиц в плазмах газового разряда и пучка и стимулирует растущий интерес к применению электронных пучков в плазмохимических технологиях.

Развитие методов генерации электронных пучков в диапазоне давлений 1-100 Па открыло новые возможности применения электронных пучков. В этом диапазоне давлений отсутствует проблема снятия заряда при обработке электронным пучком изолированных или диэлектрических материалов, что позволяет эффективно использовать электронные пучки для обработки полимеров, металлов и керамики, от низкотемпературного воздействия для обеззараживания поверхности вплоть до плавления и испарения материала. При взаимодействии электронного пучка с парогазовой смесью возникают условия для протекания плазмохимических реакций в объеме и на окружающих поверхностях, что открывает возможности получения покрытий и порошков оксидов, нитридов, карбидов металлов и более сложных соединений методом термического реактивного испарения с плазменной активацией.

Однако параметры плазмы, генерируемой электронными пучками при давлениях ~10 Па в отсутствие удерживающего пучок и плазму продольного магнитного поля исследованы недостаточно, не исследованы процессы генерации и состав газо-металлической плазмы при электронно-лучевом испарении мишени с одновременной ионизацией парогазовой среды, в которой распространяется пучок. Отсутствуют работы

по исследованию плазмы, создаваемой при инжекции электронного пучка в диэлектрическую полость. Большое число перспективных применений электронного пучка и незавершенность фундаментальных исследований параметров пучка и свойств генерируемой электронным пучком плазмы при давлениях ~ 10 Па обуславливают актуальность настоящего исследования.

Структура и содержание работы

Диссертация состоит из введения, четырех глав, заключения, списка литературы и приложений. Общий объем диссертации составляет 151 страницу, включая 88 рисунков и 5 таблиц. Список литературы включает 156 источников.

Во введении обоснована актуальность темы, сформулированы цели работы и выносимые на защиту научные положения, отмечена научная новизна, научная и практическая ценность работы.

Первая глава носит обзорный характер и содержит анализ литературных источников, посвященных экспериментальным исследованиям и численному моделированию особенностей генерации плазмы ускоренным электронным пучком как при низких (менее 10^{-1} Па), так и при более высоких (до 10^4 Па), в том числе форвакуумных (1-100 Па) давлениях газа. Отмечено отсутствие экспериментальных работ и численных моделей, посвященных генерации пучковой плазмы при инжекции электронного пучка в диэлектрическую полость в форвакууме. Обзор работ, посвященных диагностике низкотемпературной плазмы (зондовая диагностика, масс-спектрометрия ионов, оптическая спектрометрия), показал, что эти методики могут быть успешно использованы для комплексной диагностики пучковой плазмы в форвакууме. Рассмотрены различные системы для генерации газо-металлической плазмы, обсуждены их преимущества и недостатки, отмечена актуальность исследования особенностей генерации газо-металлической плазмы при электронно-лучевом испарении металлов в форвакууме. В заключении главы сформулированы основные задачи исследования.

Вторая глава посвящена описанию экспериментальной установки и методик, использованных для генерации и диагностики пучковой плазмы в форвакуумном диапазоне давлений.

В третьей главе приведены результаты экспериментальных исследований и численного моделирования процессов генерации плазмы, создаваемой электронным пучком в форвакуумной области давлений при свободном распространении электронного пучка в вакуумной камере, а также в случае инжекции электронного пучка в металлическую или диэлектрическую полости. Для объяснения особенностей пучковой плазмы в полости создана стационарная балансовая модель.

Четвертая глава посвящена описанию возможных применений пучковой плазмы, генерируемой ускоренным электронным пучком в форвакуумной области давлений. Описаны эксперименты по генерации газо-металлической плазмы при электронно-лучевом испарении металлической мишени и осаждению покрытий из полученной газо-металлической плазмы. Описывается эксперимент по пучково-плазменной стерилизации стеклянных и полипропиленовых сосудов.

В заключении приведены основные результаты работы. Список цитируемой литературы (156) наименований содержит обширную и достаточную библиографию по тематике диссертации.

Достоверность и новизна результатов

Достоверность и обоснованность результатов работы подтверждаются систематическим характером исследований, использованием различных дублирующих экспериментальных методик, сопоставлением полученных экспериментальных данных с теоретическими оценками и результатами численного моделирования, а также практической реализацией научных положений и выводов при пучково-плазменной стерилизации сосудов, создании газо-металлической плазмы и осаждении из нее оксидных покрытий.

Научная новизна результатов заключается в следующем:

1. Автором впервые исследованы процессы генерации пучковой плазмы внутри диэлектрической полости. Обнаружено, что инжекция непрерывного пучка электронов с энергией 1-10 кэВ в диэлектрическую полость обеспечивает в диапазоне давлений 1-15 Па генерацию в полости плазмы с плотностью 10^9 - 10^{11} см⁻³ и температурой электронов 1,5-3 эВ. Установлено, что концентрация и температура электронов пучковой плазмы в диэлектрической полости в 1,3-1,6 раз выше соответствующих параметров плазмы, генерируемой при свободном распространении пучка. Предложена физическая модель на основе уравнений непрерывности, баланса энергий и токов, условия квазинейтральности, баланса ионов и электронов. В результате решения системы уравнений методом последовательных приближений дано объяснение наблюдаемого эффекта, основанное на внесении в пучковую плазму дополнительной энергии за счет ускорения вторичных электронов в слое между поверхностью полости и плазмой.

2. Показано, что характер продольного распределения плотности плазмы при инжекции электронного пучка в диэлектрическую полость определяется энергией электронного пучка и давлением газа. При относительно низких давлениях и высоких энергиях электронов плотность плазмы растет вдоль длины полости, в противоположном случае – снижается. Установлено, что при оптимальных условиях неоднородность продольного распределения плотности плазмы не превышает 10%. Это обеспечивает возможность равномерной обработки внутренней поверхности стеклянных и пластиковых сосудов без их термических повреждений. Результатами экспериментов и численного моделирования показано, что на характер распределения плотности плазмы в полости влияет как ионизация газа пучковыми и плазменными электронами, интенсивность которой снижается по длине в результате рассеяния пучка и релаксации его энергии, так и ионизация газа вторичными электронами, эмитированными дном полости и ускоренными в падении напряжения вблизи дна полости, интенсивность которой растет в продольном направлении.

3. Проведены модернизация конструкции и оптимизация параметров обращенного времяпролетного масс-спектрометра, заключающиеся в установке дополнительной диафрагмы в трубе дрейфа для уменьшения засветки детектора паразитными ионами и в замене вторично-электронного умножителя на микроканальную пластину в детекторе ионов, а также в определении оптимальных диаметра входной апертуры и напряжения на отклоняющих пластинах, что позволило на два порядка величины повысить уровень выходного сигнала спектрометра и использовать его для исследования массового состава и зарядового состояния ионной компоненты пучковой плазмы, генерируемой в диапазоне давлений 1 – 15 Па.

4. Показано, что электронно-лучевое испарение металлов в форвакуумном диапазоне давлений в атмосфере кислорода обеспечивает создание плазмы, состоящей из однозарядных ионов газов, металла и его оксидов. При этом доленое содержание ионов металлов в формируемой газо-металлической плазме может регулироваться плотностью мощности электронного пучка и давлением газа. В области минимальных рабочих давлений форвакуумного плазменного источника электронов (2-3 Па) в плазме преобладают ионы металлов и его оксидов, а при давлении более 15 Па доминируют ионы газа. Проведены оценочные расчеты выхода ионизации атомов цинка и магния быстрыми электронами пучка и тепловыми электронами пучковой плазмы и установлено, что вклад тепловых электронов в образование плазмы металла может быть сравним с вкладом ускоренных электронов пучка ввиду невысоких по сравнению с газовыми молекулами потенциалов ионизации металлов. Это делает перспективным применение метода электроннолучевого испарения металлов и ионизации паров в форвакуумном диапазоне давлений в процессах осаждения покрытий и получения порошков.

Практическая ценность результатов

Автором определены условия генерации в форвакуумной области давлений однородной плазмы при инъекции ускоренного электронного пучка в диэлектрическую полость, а также показана возможность использования такой плазмы для стерилизации внутренней поверхности сосудов.

Показана возможность генерации газо-металлической плазмы при электронно-лучевом испарении металлов в форвакуумном диапазоне давлений 1-15 Па с одновременной ионизацией паров и газовой атмосферы и применения газо-металлической плазмы для осаждения покрытий.

Результаты работы могут быть использованы и в других устройствах, имеющих аналогичные разрядные системы, включая ионно-плазменные напылительные установки, генераторы низкотемпературной плазмы и ряд других, функционирующих в области повышенных давлений.

Подтверждение опубликованных основных результатов диссертации в научной печати

По результатам исследований по теме диссертации опубликовано 34 работы, среди которых 9 статей в рецензируемых журналах из перечня ВАК, и 19 полных текстов докладов на международных и всероссийских конференциях, получено 4 патента РФ на полезные модели и 2 свидетельства о регистрации программ для ЭВМ.

Таким образом, актуальность тематики, научная значимость, новизна работы и достоверность полученных результатов не вызывают сомнений.

Автореферат и сама диссертация дает достаточно полное представление о проведенных автором исследованиях, а автореферат полноценно соответствует структуре и содержанию диссертации.

Содержание диссертации соответствует специальности 01.04.04 – физическая электроника.

Рекомендации по использованию результатов работы

Полученные Д.Б. Золотухиным в процессе диссертационных исследований результаты и выводы можно рекомендовать для использования в организациях, таких как

ФГАОУ ВО Национальный исследовательский Томский государственный университет, ФГБОУ ВПО «Томский государственный университет систем управления и радиоэлектроники», ФГБУН Институт электрофизики УрО РАН, и ФГБУН Институт ядерной физики им. Г.И. Будкера СО РАН.

Связь работы с планами соответствующих отраслей науки и народного хозяйства

Низкотемпературная плазма находит множество применений, среди которых плазмохимический синтез порошков и осаждение покрытий, модификация материалов, стерилизация медицинских изделий и инструментов. В Программе фундаментальных научных исследований государственных академий наук на 2013–2020 годы, раздел 18, предусмотрены исследования в области низкотемпературной плазмы и технологий на её основе. Лазерные и электронно-ионно-плазменные технологии входят в Перечень критических технологий Российской Федерации, утверждённый Указом Президента РФ от 30 марта 2002 года.

Оценка содержания диссертации, ее завершенность в целом

Диссертационная работа в целом производит впечатление цельного самостоятельного исследования, основные научные положения, выводы, предложения и рекомендации достаточно логичны, аргументированы и являются значимыми для развития областей науки и техники, связанных с получением низкотемпературной плазмы и пучков заряженных частиц, изучением взаимодействия электронных пучков с газами и материалами и созданием электронно-ионно-плазменных технологий модификации материалов.

Критические замечания

Однако работа не лишена и недостатков, на которых мы считаем необходимым остановиться.

1. Постановка задачи об использовании электронного пучка в области форвакуумных давлений для одновременного испарения материалов, ионизации парогазовой смеси с последующим осаждением покрытий внутренне противоречива. Хотя частота ионизаций нейтральных частиц с ростом давления возрастает, однако длина свободного пробега ионов и частиц, образуемых в результате плазмохимических процессов, при этом уменьшается. По мере роста давления все большее влияние на протекание плазмохимических процессов в плазме оказывают не ионизированные частицы, а химически активные радикалы и метастабильные частицы, тогда как электронный пучок более эффективно генерирует именно ионы. Эта особенность применения исследуемого метода генерации газо-металлической плазмы для нанесения покрытия при форвакуумных давлениях проанализирована в недостаточной степени.

2. Применение метода электрометрической масс-зарядовой спектроскопии на основе модернизированного квадрупольного анализатора при повышенных давлениях газа приводит к значительным погрешностям измерений даже при использовании дифференциальной откачки объема спектрометра. Как известно, это обусловлено существованием области перепада давления за входной апертурой, что приводит к искажениям спектра в результате резонансной перезарядки ионов на собственном газе. Введение протяженной трубы дрейфа усугубляет этот эффект, так как откачка ее объема

через малые отверстия ионно-оптической системы затруднена. Оценка снижения амплитуды пика молекулярных ионов азота в результате перезарядки в описанных условиях эксперимента дает значение около 1,5. Для уменьшения погрешности измерений необходимо уменьшать размер входной апертуры, а также рекомендуется производить математическую обработку спектра с учетом различия в значениях коэффициента резонансной перезарядки для разных ионов.

3. В выводах по главе 2 утверждается, что модернизация квадрупольного газового анализатора позволила создать устройство, способное с точностью до 1 а. е. м. исследовать ионный состав как газовой, так и газо-металлической плазмы. Вообще-то, у спектрометров нет такой характеристики, как точность. Правильнее использовать такие параметры, как чувствительность обнаружения и разрешение по массам.

4. На стр. 30 диссертации содержится утверждение о том, что «Недостатком магнетронного распыления является тот факт, что ..параметры разряда могут быть нестабильны в случае использования в качестве рабочего газа химически активного газа (кислорода), как следствие образования оксидных пленок на катоде». Следует отметить, что этот недостаток устраняется применением высокочастотного разряда.

5. На стр. 32 диссертации утверждается, что «... в случае использования термокатодного источника электронов для его надежного функционирования давление газа, особенно кислорода, (должно быть – ред.) ограничено величиной 0,01 Па». Следует уточнить, что это утверждение не относится к разрядам с самонакаливаемым полым катодом, парциальное давление кислорода в анодной плазме которых может быть на порядок величины выше указанного при условии, что газ, прокачиваемый через катодную полость, является инертным (для TiN катодов также может быть использован азот).

6. При описании экспериментов по осаждению диэлектрических покрытий испарением навески металла (Mg или Al) не указан режим источника напряжения смещения, но приводятся оценки энергии ионов, падающих на подложку, исходя из величины напряжения смещения. При постоянном напряжении смещения из-за влияния поверхностного заряда такие оценки некорректны (стр. 113).

7. На стр. 120 заявлено, что «Спектры, представленные на рисунке 4.12, свидетельствуют о том, что осажденные покрытия являются нестехиометрическими и содержат в своем составе как атомы испаренного металла, так и кислорода. Этот факт вместе с малой поверхностной проводимостью демонстрирует успешную возможность применения форвакуумного источника для нанесения диэлектрического покрытия из газо-металлической пучковой плазмы в форвакуумном диапазоне давлений». Отметим, что нестехиометричность полученных покрытий никак нельзя отнести к достоинству метода. Внешний вид полученных покрытий (рис. 4.9), состоящих из крупных (десятки мкм) глобул, также не внушает оптимизма. Получаемые методом реактивного электронно-лучевого испарения при более низких давлениях (~0,3 Па) покрытия из оксида алюминия обычно являются аморфными и имеют плотную однородную структуру. Справедливости ради отметим, что для получения качественного оксидного покрытия новым методом может потребоваться объем работы, эквивалентный еще одной кандидатской диссертации.

8. Использование электронного пучка в качестве испарителя и ионизатора одновременно вряд ли позволит получить качественные оксидные покрытия. Например, известно, что твердое нанокристаллическое покрытие, состоящее из гамма-фазы оксида

алюминия, формируется только при интенсивном ионном сопровождении (5-10 ионов на атом). Соответственно, электронный пучок должен иметь параметры, обеспечивающие сочетание требуемых значений скорости испарения металла и частоты ионизации парогазовой смеси, что трудно реализуемо.

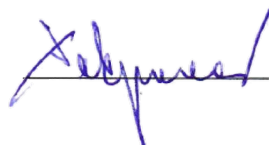
Заключение о соответствии диссертации критериям, установленным Положением о порядке присуждения ученых степеней

Сделанные замечания не снижают общей научной и практической ценности диссертационной работы, которая четко структурирована, в ней использован простой и понятный стиль изложения, качество оформления работы высокое. По каждой главе сформулированы содержательные выводы, что облегчает понимание материала.

Таким образом, на основании изложенного можно сделать вывод о том, что диссертация Д.Б. Золотухина является научно-квалификационной работой, в которой содержится решение задачи определения особенностей генерации и диагностики плазмы, создаваемой в форвакуумном диапазоне давлений источником электронов с плазменным катодом в отсутствие удерживающего пучок магнитного поля в условиях свободного распространения электронного пучка, при его инжекции в диэлектрическую полость, а также при электронно-лучевом испарении металлической мишени, которая имеет существенное значение для развития соответствующих разделов физики и техники генерации плазмы и электронных пучков, технологий плазмохимического синтеза порошков и осаждения покрытий, методик стерилизации изделий и инструментов. Диссертация Золотухина Д.Б. соответствует всем требованиям ВАК и требованиям п.9 «Положения о порядке присуждения ученых степеней», утвержденного Постановлением Правительства РФ от 24 сентября 2013 г. № 842 (с изменениями, внесенными Постановлением Правительства РФ от 21 апреля 2016 г № 335), предъявляемым к диссертациям на соискание ученой степени кандидата наук, а ее автор Д.Б. Золотухин заслуживает присуждения искомой ученой степени кандидата физико-математических наук по специальности 01.04.04 - физическая электроника.

Отзыв на диссертацию Золотухина Д.Б. обсужден и одобрен на расширенном научном семинаре лаборатории пучков Института электрофизики УрО РАН в качестве отзыва ведущей организации (протокол № 10 от 16 ноября 2016 г.).

Доктор технических наук,
член-корреспондент РАН



Гаврилов Н.В.

Гаврилов Николай Васильевич почтовый адрес: г. Екатеринбург, 620016, ул. Амундсена, 106, телефон: 8-(343)-267-87-78, адрес электронной почты: gavrilo@ier.uran.ru наименование организации: Федеральное государственное бюджетное учреждение науки Институт электрофизики Уральского отделения Российской академии наук (ИЭФ УрО РАН), должность - заведующий лабораторией пучков частиц, доктор технических наук, член-корреспондент Российской академии наук.