

溅射方法干式处理超导加速腔表面的研究与分析^{*}

朱 凤[†] 焦 飞 全胜文 郝建奎 赵 夔

(北京大学核物理与核技术国家重点实验室,重离子物理研究所,北京 100871)

(2008 年 4 月 9 日收到,2008 年 6 月 24 日收到修改稿)

详细研究了利用超高真空氩离子清洗技术发展的一种超导铌腔表面的“干式”处理方法,从微观和宏观角度分析了溅射处理对铌的表面特性和对超导腔性能的影响.与传统的“湿式”处理方法(化学抛光 BCP 和电抛光 EP)相比,干式处理方法具有结构简单、容易控制、没有污染等优点,是一种很有潜力的超导腔处理方法,可以提高超导腔的性能.

关键词:超导加速腔,溅射,形貌分析,残留电阻比 RRR

PACC:2915,7400,8160

1. 引 言

射频超导腔技术已成为目前加速器研究前沿领域的首选技术.超导腔的表面状况直接影响到超导腔的低温性能.目前国际上常用的超导腔表面处理方法有高压水冲洗(HPR),化学抛光(BCP),电抛光(EP),高温热处理等.其中 BCP 和 EP 均采用腐蚀性很强的浓酸,带来工作安全和环境污染的问题,残余在超导腔表面的酸液则容易造成超导腔品质因数的降低. EP 与 BCP 相比,抛光效果更好,表面粗糙度减小,超导腔的性能更优越.但是,EP 具有装置复杂、造价高、危险性大、耗时长等更多缺点.因此,国际上一些实验室也在寻求可以代替或者补偿 BCP 或者 EP 的超导腔表面处理方法.美国杰弗逊实验室(JLab)已经立项做等离子体清洗超导腔的研究,但他们目前仅做了样品实验^[1],还没有等离子体处理超导腔的实验数据.北京大学在溅射镀膜和溅射表面处理方面均有丰富的经验^[2],我们首次将溅射处理的工艺应用在超导腔的后处理上,并获得了很好的样品分析结果和超导腔实验结果,对提高超导腔性能具有非常重要的意义.

2. 溅射处理的原理与实验装置

溅射处理(SP)的抛光原理与 EP 类似,需要阴

极和阳极,超导腔为阴极,接负高压,阳极接地.氩离子的辉光放电形成等离子体,在一定放电电流和放电电压下,氩离子以较高的能量对铌表面进行撞击、溅射,把超导腔表面的突起、毛刺很快地溅射抛光,起到很好的表面抛光处理的作用.我们采用结构比较简单的直流二极溅射,主要参数包括溅射气压、放电电流和放电电压等,比较容易控制.

图 1 为我们采用的北京大学超高真空直流二极溅射装置,整个系统包括超高真空溅射室、真空系统、溅射电源、进气控制系统(氩气、氮气)等,溅射室的本底真空可以达到低于 10^{-6} Pa. 铌样品和超导腔的溅射处理就是在此装置中进行的.

3. 溅射法处理铌表面的样品研究

样品研究工作主要分两步进行,系统分析溅射处理法对铌表面物理性能的影响:①溅射处理铌样品前后的形貌分析;②铌材通过长时间的溅射处理后,残留电阻比(RRR)的分析测量.

3.1. 铌样品形貌分析

样品选取 RRR 值约为 250 的日本多晶铌材,尺寸约为 $1\text{ cm} \times 1.5\text{ cm}$,分为四组:化学抛光样品、电抛光样品、化学抛光+溅射抛光样品、电抛光+溅射抛光样品.电抛光和化学抛光进行前,样品都经过砂

^{*} 国家重点基础研究发展计划(批准号:2002CB713600)资助的课题.

[†] E-mail: zhufeng7726@pku.edu.cn

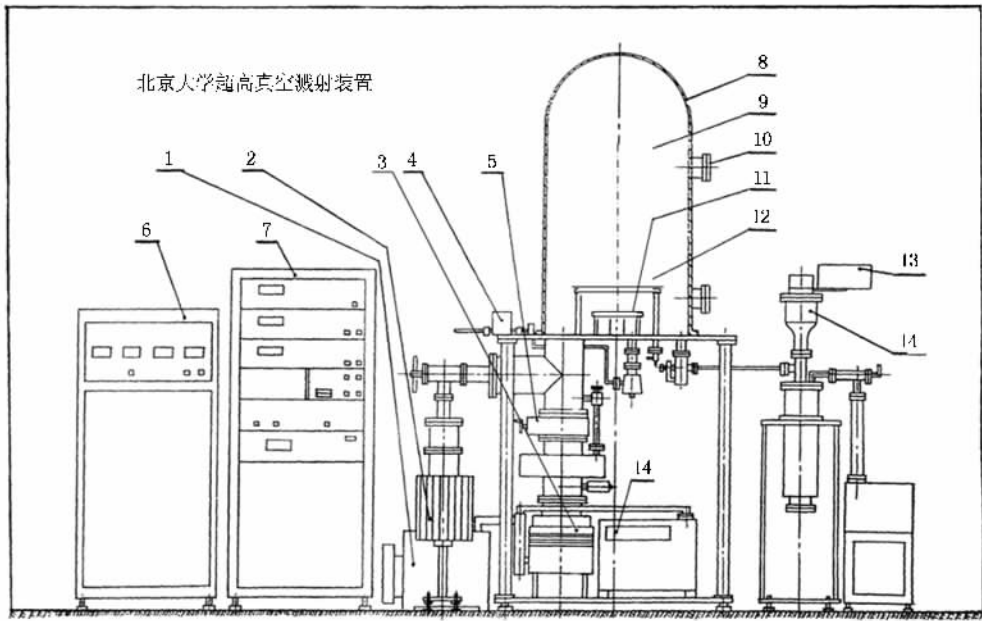


图1 超导铌腔与铌样品的溅射处理装置 1为机械泵 2为离子泵 3为分子泵 4为质量流量计 5为真空室主阀 6为高压电源 7为溅射电源 8为真空室外壁 9为超高真空室 10为观察窗 11为阳极 12为阴极 13为气体分析系统 14为检漏仪

纸机械抛光,以除去表面的划痕.化学抛光采用的酸溶液为 HF(48%), HNO_3 (65%)和 H_3PO_4 (85%)按照 1:1:2 的配比混合而成.抛光速率接近 $1 \mu\text{m}/\text{min}$,抛光时间为 1 h.电抛光的酸溶液为 H_2SO_4 (96%)和 HF(48%)按照 9:1 的配比混合而成.电抛光时样品作为阳极,阴极选取小铝板,电流为 120 mA,控制酸的温度在 30°C 左右,电抛光速率在 $0.4 \mu\text{m}/\text{min}$,电抛光时间约为 60—90 min.

溅射时阴阳两极采用两个圆盘,进行平行板两极溅射,如图 1 所示,样品固定在阴极盘上,接负高压,阳极盘接地,两极间的距离为 4 cm.气体放电遵循帕刑定律^[3],击穿电压是气体压强 P 与两极间距 d 乘积 Pd 的函数,并且有一极小值.根据帕刑定律,

我们在两极间距一定的情况下,寻找合适的溅射气压.此外,放电电压受溅射气压的影响,气压越高,放电电压越低.实验时的溅射气压为 20—30 Pa,溅射电流为 0.2—0.3 A,采用间歇溅射,溅射总时间为 2 h,每隔一个小时溅射 30 min.

图 2 是一个化学抛光的样品 # 1 经过 SP 处理前后的铌表面扫描电镜(SEM)图片.可见溅射后铌表面的粗糙度比溅射前降低,晶界处的台阶比溅射前略微降低.在高倍数扫描图片上呈现溅射小孔,主要是由于阴极靶表面的一点放电造成的,即氩离子不断轰击铌靶表面的同一点.为了消除一点放电,需要改变两极间的相对位置,采用旋转溅射可以使铌表面的溅射小孔变小、变浅.

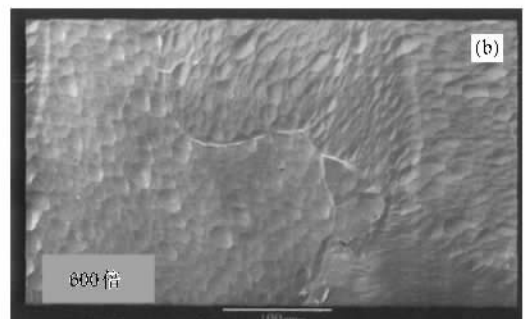
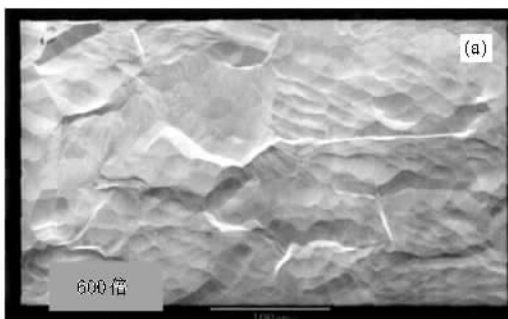


图2 化学抛光样品溅射处理前后的 SEM 表面形貌 (a)#1 化学抛光 (b)#1 化学抛光+溅射

图 3 是一个电抛光后的铌样品溅射前后的扫描图片.与图 2 的 # 1 化学抛光后的形貌相比,样品 # 3 经电抛光后的表面非常光滑.但是 # 3 在溅射前的

晶界很不清楚,溅射处理后铌表面仍然光滑,但从 SEM 图上可以清楚地看到表面重结晶的现象,晶界比溅射前更为分明,晶粒变大.

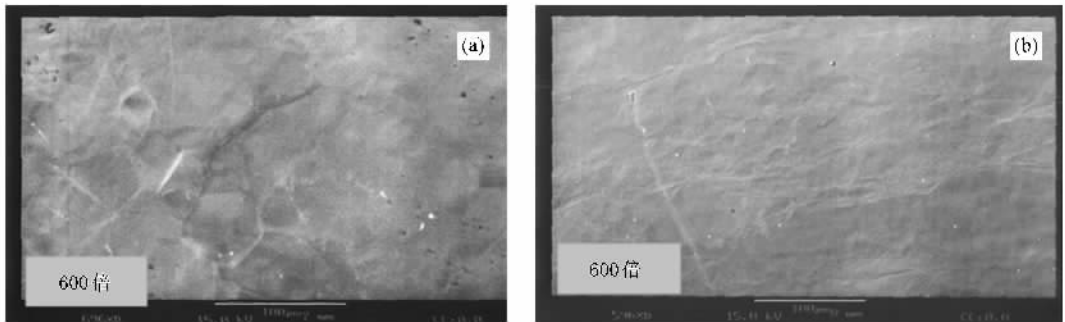


图 3 电抛光铌样品 SP 处理前后的 SEM 表面形貌 (a)# 3 电抛光 (b)# 3 电抛光 + 溅射

在 BCP 样品、EP 样品和 SP 样品(在 BCP 或者 EP 的基础上进行 SP 处理)中,用眼睛直接观察铌表面,SP 样品的光亮度最高,其次为 EP 样品,最后是 BCP 样品.从 SEM 显微照片上看,SP 能改善化学抛光后样品的表面形貌,在大尺度下降低表面的粗糙度.通过采用旋转溅射可以有效抑制溅射小孔,使表面更加光滑.此外,SP 还具有使铌表面进行重新结晶的作用,这一现象可以用眼睛直接看出来.图 4 给出了同一个铌靶的未溅射部分和多次溅射部分的数码照片,其外貌具有鲜明对比.溅射作用在铌表面上使铌多次退火、结晶,晶粒变大,晶界鲜明,而未溅射部分的铌属于细晶结构,直接用眼睛看不出晶粒与晶界.

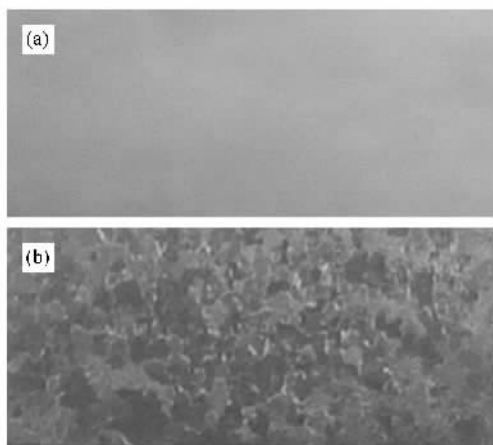


图 4 未溅射 (a)与溅射 (b)后的数码照片

3.2. 铌样品溅射前后 RRR 的分析测量

铌样品的溅射处理采用圆筒状的阴、阳电极.阴

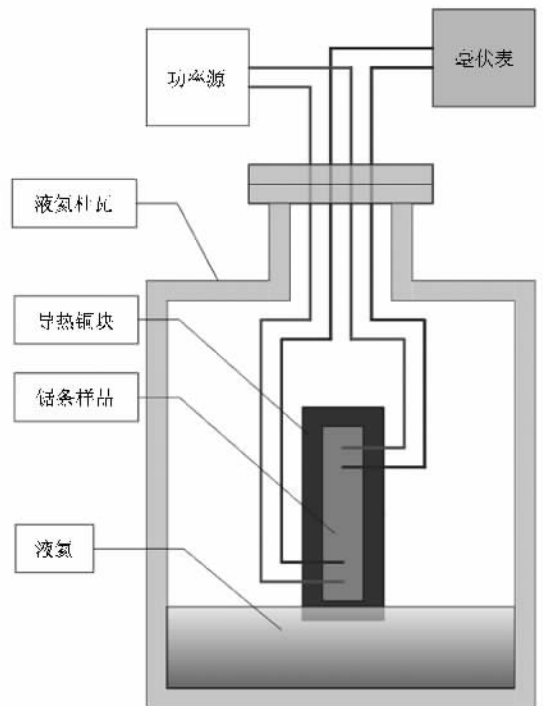


图 5 四引线法测量 RRR 的示意图

极铌靶采用直径为 10 cm,厚度为 2.5 cm,长为 70 cm 的铌筒,阳极为内径为 18 cm 的铜筒,与铌靶外表面的距离为 4 cm.根据经验选取溅射气压为 14 Pa,溅射电流为 1 A 左右,溅射电压为 1.0—1.5 kV.采用间歇式多次溅射,每次 25 min,溅射完毕后,铌靶保持在真空中,等其自由冷却,铌靶表面即在真空中退火结晶.取出铌靶切下厚度为 3 mm 的几圈,将其拉直,并制成 3 mm × 3 mm × 80 mm 的铌条,作为用于 RRR 测量的样品.

残留电阻比 (RRR) 的定义为超导体在室温下的电阻率与其在低温正常态下的电阻率之比(这里我们用 r_{RRR} 表示 RRR 的值)。人们测量 r_{RRR} 时,通常是测量 300 K 和即将到达临界温度时的电阻值,对铌来说

$$r_{RRR}(\text{测量}) = \frac{\rho(300\text{ K})}{\rho(\sim 10\text{ K})}. \quad (1)$$

r_{RRR} 与铌材的热导相关, r_{RRR} 越高,铌材越纯,热导越好,在低温超导情况下超导腔腔壁产生的热量越少,且越容易被传走。在 4.2 K 时,热导与 r_{RRR} 有如下关系式^[4]:

$$K_s = \frac{r_{RRR}}{4} (\text{W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}). \quad (2)$$

对于铌腔, r_{RRR} 越大,其热导就越好,我们研究溅射处理后铌样品 r_{RRR} 值的变化。

r_{RRR} 的测量采用四引线法。图 5 显示了 r_{RRR} 测量的示意图,实验仪器包括 mV 电压表、直流功率源、电压换向开关、液氮杜瓦。实验时将样品固定在铜基底上插入液氮杜瓦中,四引线引出连接到电压表和功率源上,进行样品的电阻测量。当样品的电阻突然变为零时,铌条进入超导状态,通过提升样品在杜瓦中的位置判断样品在临界温度附近的电阻值。

表 1 给出了 r_{RRR} 值的测量结果。三个样品出自同一铌材,样品 1 未经溅射,样品 2、3 是从溅射后铌材不同位置上裁减下来的。由表可见,溅射后铌样品的 r_{RRR} 比未溅射样品的 r_{RRR} 升高了 50—60,因而溅射后铌材的热导和纯度得到了提高。

表 1 溅射前后铌样品的 RRR 值

样品	室温电阻/mΩ	超导前的电阻/mΩ	r_{RRR}
样品 1 (未溅射)	1322	6.0	220
样品 2 (溅射)	1850	7.0	283
样品 3 (溅射)	2080	8.15	273

r_{RRR} 值体现的是整个铌材的性能,实际在超导腔中最关心的是铌的表面性能。由于溅射法 Ar 离子轰击铌表面,所以主要是铌的表面升温、退火,将表面的杂质气体溅射、烘烤出来,提高腔表面的纯度。所以溅射后铌的表面性能应该比由 r_{RRR} 衡量的数据有更大的提高。

无论是从肉眼观看还是从 SEM 显微照片上观察,溅射后铌表面的晶粒都比溅射前大得多, r_{RRR} 值的测量则进一步证明溅射处理的高温退火效应,溅射处的杂质气体被真空泵带走,起到铌材纯化的作

用。从样品分析和 SP 原理上来讲,SP 处理应可以提高超导腔的性能——品质因数和加速梯度。

4. 溅射法处理超导铌腔的实验与结果分析

北京大学射频超导室设计研制的 DC-SC 光阴极注入器样机的核心元素为一个 1.3 GHz 1 + 1/2 cell 超导腔^[5]。该超导腔经过系列常规处理后,在 4.2 K 温度下进行低温性能实验,开始超导腔的品质因数 Q 值小于 10^8 ,经过 120℃ 烘烤后, Q 值达到 10^8 ,但是超导腔的最大加速梯度仅有 3 MV/m,限制因素为电子倍增现象(MP),不能通过增大功率提高超导腔的加速梯度。在这种条件下,我们对该超导腔的内表面进行了真空溅射处理(SP)。

超导腔处理的实验装置采用图 1 所示的超高真空溅射室。超导腔作为阴极,接负高压,钛棒作为阳极,接地。高纯氩气作为工作气体。之所以采用钛棒作为阳极,是因为钛具有很强的吸附气体的能力,可以把溅射出的杂质气体吸附干净。溅射时,电流从 0.2 A 逐渐增大,在大电流下可以稳定工作后,在 1.5—1.8 A 进行了 1 h 的溅射处理,溅射电压为 0.5 kV,溅射气压在 20 Pa 左右。超导腔溅射结束后,开始让腔在真空下退火。经过 48 h 的真空退火,腔的温度降到室温,此时溅射室的真空为 8×10^{-7} Pa 的超高真空。

对溅射处理过的超导腔重新进行 4.2 K 低温超导实验。开始时馈入小功率,腔内没有 MP,随着功率的加大,MP 出现,经过 1 h 的锻炼,MP 现象消除。再增大进腔功率,MP 也没有出现,与溅射处理前相比发生了飞跃性的进展。超导腔的 Q 值仍然保持 Bake 的效果,即 $\sim 10^8$,克服 MP 之后,超导腔在加速梯度为 6 MV/m 的情况下出现失超。

超导腔溅射处理后,超导腔的性能有了很大的改善,主要表现在两个方面:

第一方面,MP 的改善。在溅射处理之前,超导腔始终被 MP 所限制。这与腔的结构和处理有关,1 + 1/2 超导腔的结构较整个单元的超导腔复杂,一端只有一个直径为 8 mm 的小孔,增大了处理的难度,化学抛光、电抛光后腔表面可能有残留液体或者很结实的杂质没有被高压水带走,造成铌腔的实际二次电子发射系数比模拟计算值高很多,低温实验时 MP 很难被消除。图 6 是采用 MultiPac 程序在纯铌的理

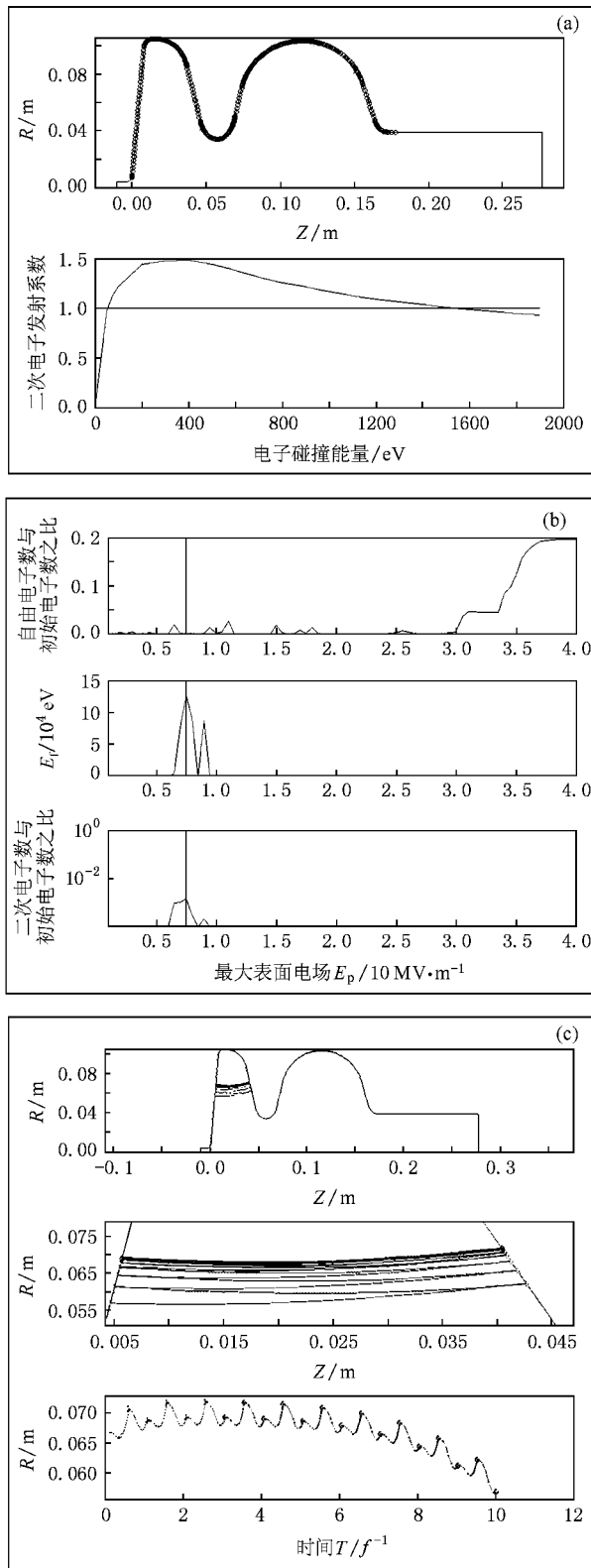


图6 采用 Multipac 程序对 1+1/2 超导腔 Multipacting 模拟分析 (a) 1+1/2 超导腔形和模拟计算所采用的铌的二次电子发射系数随碰撞能量的关系 (b) 峰值电场范围 1—40 MV/m 时, 自由电子数、电子最后一次碰撞的平均能量 E_p 和保留下来的二次电子数随峰值电场的变化情况 (c) 峰值场强为 7.5 MV/m 时的电子运动轨迹

想二次电子发射系数下模拟计算得到的 1+1/2 超导腔的 MP 分析. 由图可见, 超导腔的半腔部分在功率较低的情况下, 产生两点间的 MP 的危险性很大.

溅射处理时, Ar 离子以很高的能量轰击铌腔表面, 将表面的杂质和毛刺轰击出来, 使腔得到彻底的清洗. 而且气体放电本身就是一种室温下的 MP 锻炼. 这样经过一两天的溅射处理, 室温下的 MP 得到解决.

第二方面, 退火处理, 消除应力, 除去腔表面吸附的 H, N 等元素. 溅射时腔的温度可以达到很高 (控制溅射电流可以高达 1000℃), 每次溅射完毕腔都是在超高真空下进行退火处理, 消除了束管处由于电子束焊接所产生的应力, 解决腔的不稳定性. 同时, 还可以提高铌腔的 r_{RRR} , 提高铌腔的热导; 除去化学抛光时残留的酸液及吸附的对超导腔性能严重影响的氢、氮、碳氢化合物等.

5. 结 论

本文系统研究了“干式”处理超导腔的方法, 包括从样品测量到超导腔的实验测试的分析研究. r_{RRR} 值测量和 SEM 显微分析均表明了溅射法处理铌材可以提高铌表面的物理性能. 北京大学 1+1/2 超导腔经过溅射处理后大大改善了腔的 MP 现象, 提高超导腔的加速梯度, 进一步证明它的可行性. 与传统的 BCP 和 EP 相比, 它具有以下优点:

①干式处理, 没有污染; ②结构简单, 容易控制; ③清洗与表面结合很牢的杂质; ④室温下的 MP 锻炼, 超导情况下 MP 大大减少. 这对不规则超导腔来说尤为重要, 因为不规则超导腔通常没有合适的 MP 程序来指导, 腔实验时通常存在 MP; ⑤退火作用, 提高纯度. 溅射时铌腔不断被能量很高的 Ar 离子轰击, 温度不断上升, 可以对腔起到真空退火, 重结晶的作用.

此外, 这种方法也可以方便地应用到多个加速单元的超导加速腔上.

- [1] Raskovic M ,Vuskovic L , Popovic S , Phillips L 2006 *Nucl . Instr . Meth . Phys . Res . A* **569** 663 p63 (in Chinese)[胡志强 1985 气体电子学 (北京 : 电子工业出版社) 第 63 页]
- [2] Zhao K ,Zhu F ,Wang L F , Meng T J , Zhao B C , Zhao K 2001 *Acta Phys . Sin .* **50** 1390 (in Chinese)[赵 坤、朱 凤、王莉芳、孟铁军、张保澄、赵 夔 2001 物理学报 **50** 1390]
- [3] Hu Z Q 1985 *Gas Electronics* (Beijing : Press of Electronics Industry)
- [4] Bonin B 1996 *Proceedings of CERN Accelerator School* CERN96-03 p195
- [5] Zhao K ,Hao J K ,Hu Y L , Quan S W , Chen J E 2001 *Nucl . Instr . Meth . Phys . Res . A* **475** 564

Surface dry treatment of RF superconducting cavity by sputtering *

Zhu Feng[†] Jiao Fei Quan Sheng-Wen Hao Jian-Kui Zhao Kui

(State Key Laboratory of Nuclear Physics and Technology ,Institute of Heavy Ion Physics , Peking University ,Beijing 100871 ,China)

(Received 9 April 2008 ; revised manuscript received 24 June 2008)

Abstract

We have developed a new technique of surface treatment of RF superconducting cavity by sputtering under ultra high vacuum. In this paper ,impacts of sputtering treatment on the surface properties of niobium sample and niobium cavity are analysed in detail. Compared with the traditional “ wet ” cavity treatment (buffered chemical polishing and electro-polishing) ,this dry treatment is simple ,easy to control ,less costly and without pollution. It is a potential superconducting cavity surface treatment method and can improve the performance of the cavity.

Keywords : superconducting cavity , sputtering , SEM , RRR

PACC : 2915 , 7400 , 8160

* Project supported by the National Basic Research Program of China (Grant No. 2002CB713600)

[†] E-mail : zhufeng7726@pku.edu.cn