

# ИСТОЧНИК КЛАСТЕРНОГО ПУЧКА ВНЕШНЕГО ИСПОЛНЕНИЯ С ЛАЗЕРНЫМ ИСПАРЕНИЕМ ДЛЯ ШИРОКОГО ПРИМЕНЕНИЯ

*В.А. Батури́н, А.Ю. Карпенко, С.А. Пустовойтов*  
*Институт прикладной физики НАН Украины*  
*Сумы, Украина*  
*E-mail: baturin@ipflab.sumy.ua*

Описан кластерный источник с лазерным испарением мишени, работающий в импульсном режиме. Отличительной особенностью источника является его внешнее исполнение, что упрощает юстировку лазера и даёт возможность использовать источник для применения в различных приложениях. В составе источника в качестве импульсного газового затвора используется электромагнитный клапан, работающий на основе ударно-бойкового механизма и позволяющий получать короткие газовые импульсы длительностью  $\geq 50$  мкс. Возможна генерация кластеров различных веществ, а при использовании вместо инертного несущего газа – реактивного, образование новых молекул, таких, например, как ZnO, TiN<sub>x</sub> и TiO<sub>2</sub> и осаждение тонкопленочных покрытий с их использованием. Приведены некоторые первые результаты экспериментальных работ с использованием этого источника.

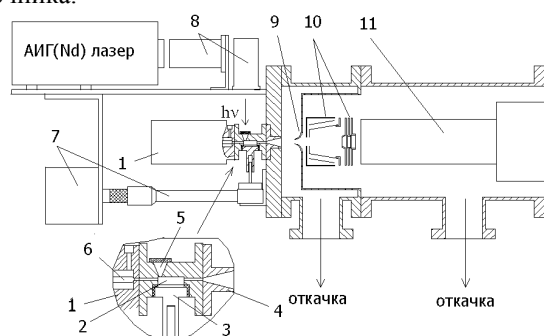
PACS: 52.50.Gj

Кластеры, как физические объекты, состоящие из связанных между собой атомов, и обладающие специфическими свойствами, были известны с 18-го века и широко изучались Фарадеем в качестве коллоидных растворов золота [1]. Находясь в некой средней области между атомами и совокупностями малых групп атомов, они имеют слишком много частиц для правильного математического описания отдельного атома, и не так много, как требуется для статистического описания большой совокупности атомов. Свойства кластеров не монотонным образом зависят от числа составляющих их атомов или молекул. Относительно не реактивный кластер с устойчивым числом внешних частиц может стать гораздо реактивнее только при добавлении или вычитании одного атома. Отличительной особенностью кластеров является то, что составляющие их атомы образуют определённую структуру и если эта структура является замкнутой, то кластер имеет повышенную стабильность [2]. В настоящее время они становятся предметом интенсивных исследований и применяются в различных областях, включая медицину, химию, электронику и нанотехнологии [3], синтез материалов с уникальными свойствами. Особая роль в таких исследованиях принадлежит заряженным кластерам, которые называются кластерными ионами. Их можно легко использовать для выделения кластеров необходимого размера при помощи методик массовой сепарации [4,5].

Для получения пучков заряженных кластеров в лабораторных условиях существует несколько различных методов, выбор которых определяется требованиями эксперимента в зависимости от интенсивности кластерного пучка, его энергии, присутствию в пучке кластеров определённого размера, их вида, наличия ионизации кластеров, их температуры и так далее.

Источник, основанный на испарении вещества под действием лазера в потоке инертного газа носителя, был впервые разработан Смоли и сотрудниками [6] и претерпел множество изменений и усовершенствований в различных лабораториях [7,8].

В настоящей работе описывается одна из разновидностей такого источника с лазерным испарением мишени, который работает в импульсном режиме и отличается внешним исполнением его конструкции, что упрощает юстировку источника и замену мишени испарительного лазера. Для получения высокоинтенсивных потоков инертного газа носителя в источнике применяется оригинальная конструкция короткоимпульсного электромагнитного клапана. Кратко описываются результаты первых экспериментов, полученных при использовании этого источника.



*Рис.1. Продольное сечение установки с импульсным источником кластерного пучка внешнего исполнения. 1 - короткоимпульсный клапан; 2 - камера подготовки; 3 - вращающийся подложкодержатель; 4 - сопло; 5 - ввод для лазерного излучения; 6 - запорная игла клапана; 7 - привод вращения мишени; 8 - оптическая система лазера; 9 - скиммер; 10 - источник ионов и система формирования пучка; 11 - монополярный масс-спектрометр*

Рассматриваемый источник является модернизированным вариантом кластерного источника, ранее разработанного и испытанного в Институте прикладной физики НАН Украины [9]. На Рис.1 показано продольное сечение кластерного источника. Сам источник находится снаружи вакуумного объёма и условно его можно разделить на две составные части: короткоимпульсный клапан 1 и камеру подготовки 2 с вращающимся подложкодержателем 3 и вводом для лазерного излучения 5.

Работа источника основана на получении кластерного пучка путём лазерного испарения поверхности вращающегося диска-мишени, установленного на импульсном сверхзвуковом сопле. В источнике используется быстро нарастающий импульс газа носителя, который расширяется в цилиндрическую камеру подготовки, где в него вовлекается факел плазмы, полученный в результате лазерного испарения диска мишени, расположенного на вращающемся подложкодержателе. В камере подготовки идут процессы образования и термализации кластеров, которые вместе с газом носителем претерпевают свободное сверхзвуковое расширение из сопла в вакуум.

В качестве короткоимпульсного клапана 1 используется электромагнитный газовый клапан, разработанный нами ранее и описанный в [10]. Он работает на основе ударно-бойкового механизма, который позволяет получать короткие импульсы газа  $\geq 30 \mu\text{s}$  с высокой крутизной переднего фронта. Открывание клапана происходит в результате удара подвижного сердечника электромагнита по упору, связанному с пружиной, удерживающей запорную иглу в закрытом состоянии, и открывающей её во время удара. В отличие от импульсных сопел, относящихся к соплам типа магнитной «петли тока» впервые предложенных Димовым [11] и применяемых в экспериментах со сверхзвуковыми молекулярными пучками [7,8], данный клапан, имея схожие характеристики газового импульса, требует сравнительно небольших энергозатрат (единицы ампер), хотя его стабильная работа обеспечивается на частотах повторения несколько герц.

В источнике используется испарительный лазер АИГ(Nd), работающий в режиме модуляции добротности и вырабатывающий импульсы с длиной волны 1064 нм и средней энергией 6 мДж/имп, длительностью 20 нс и диаметром пятна в фокусе 100 мкм. Его излучение попадает в камеру подготовки 2 через вакуумноуплотнённое стеклянное окошко и отверстие, высверленное в медном корпусе кластерного источника и имеющего конусообразную форму 5. На вращающийся подложкодержатель 3 наклеиваются диски-мишени диаметром 10 мм. Подложкодержатель вращается в блоке сопла на вакуумном уплотнении с такой скоростью, чтобы во время срабатывания лазера, испарение материала мишени происходило с нового пятна.

Вакуумный объём, состоящий из двух камер, соединён между собой скиммером 9 с диаметром отверстия 2 мм. Каждая из камер откачивается турбомолекулярным насосом со скоростью откачки 100 л/с. После свободного расширения из сопла газовая смесь, состоящая из кластеров испаренного вещества и буферного газа, попадает в вакуумный объём со скиммером. Здесь из струи газа выделяется центральная часть пучка, попадающая во вторую вакуумную камеру, а остальной газ из свободно расширенной струи скачивается вакуумным насосом. Таким образом в рабочем объёме второй камеры не происходит значительных скачков давления остаточного газа и оно поддерживается на уровне  $4 \times 10^{-4}$  Па. После прохождения пучка через

скиммер происходит его ионизация в источнике ионов с электронной бомбардировкой 10, а затем и его формирование. Регистрация пучка производится в монополюсном масс-спектрометре 11 при помощи цилиндра Фарадея, либо ВЭУ. Дополнительная регистрация газового потока возможна при помощи ионизационного манометра, разработанного в нашей лаборатории и устанавливаемого на пути газового потока [12].

Синхронизация открывания газового клапана со вспышкой лазера происходит при помощи специального устройства, дающего возможность получать временную последовательность этих событий с точностью до микросекунд, что немаловажно для стабильной работы источника. Для регистрации сигналов, получаемых с масс-спектрометра либо ионизационного манометра, используется запоминающий осциллограф С8-14, подключаемый на аналоговые входы этих приборов.

При исследовании рабочих характеристик кластерного источника были проведены измерения параметров газового импульса на выходе электромагнитного клапана, который подключается непосредственно к вакуумному объёму. Перед выходным отверстием клапана размещался ионизационный манометр, сигнал с которого фиксировал форму газового импульса. На Рис.2 показана осциллограмма газовых импульсов на выходе клапана при двух различных питающих напряжениях на катушке возбуждения.

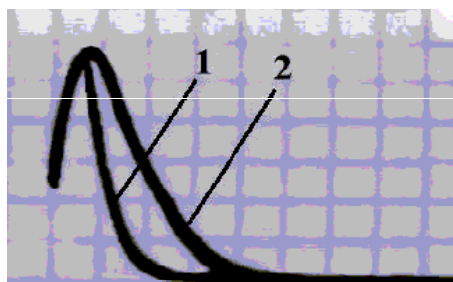


Рис.2. Осциллограмма газового импульса, зарегистрированная ионизационным манометром (масштаб развертки 50 мкс/деление) при двух разных питающих напряжениях на обмотке возбуждения у клапана  $U_1 < U_2$ , где 1- соответствует  $U_1$ , 2- соответствует  $U_2$ . Давление газа на входе клапана 0,2 МПа

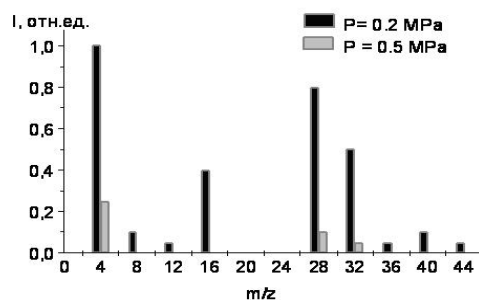


Рис.3. Спектр нейтральных кластеров He, ионизированных электронным пучком, полученный при двух разных давлениях на входе клапана

Были проведены масс-спектрометрические измерения в сверхзвуковом молекулярном пучке He и после его ионизации, при отсутствии импульсов испарительного лазера, которые показали наличие кластеризации в пучке инертного газа. Спектр малых кластеров He приведен на Рис.3. Однако при увеличении давления на входе импульсного клапана с 0,2 до 0,5 МПа, мы обнаружили, что интенсивность отдельных пиков заметно уменьшилась, а многие и попросту пропали. После многих исследований было установлено, что этот эффект связан с рассеиванием пучка в первой вакуумной камере в области между соплом и сепараторной диафрагмой. Нейтральный пучок кластеров He, проходящий через апертуру, был фактически полностью разрушен, рассеиваясь при взаимодействии с постоянной ударной волной, которая формировалась вокруг диафрагмы в результате сверхзвукового расширения газа из сопла. Эта проблема была связана с несовершенной формой сепараторной диафрагмы и решалась при помощи изменения конструкции скиммера.

В публикации [9] мы кратко представляли результаты проведенных нами работ по получению углеродных плёнок на металлические подложки при помощи такой же конструкции кластерного источника. Эксперименты с новой модификацией источника фактически повторили ранее полученные нами результаты и были получены тонкие углеродные пленки с однородной морфологией. При этом главный недостаток работ заключался в малых размерах покрытия на поверхности, ограниченной размерами пучка (см. Рис.4), что приводит к необходимости, в дальнейшем, создания подвижной системы подложкодержателя с возможностью перемещения в плоскости, перпендикулярной направлению распространения пучка.

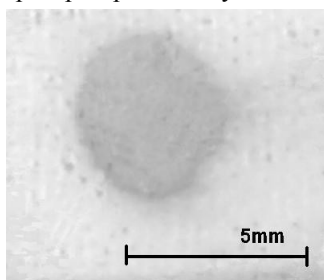


Рис.4. След пучка кластеров углерода на металлической пластине

В то время как было опубликовано значительное число работ, посвящённых источнику кластерного пучка с лазерным распылением, в целях улучшения параметров пучков металлических кластеров и критериев свободного массового отбора, имеется гораздо меньшее число работ в области использования этого источника, посвящённых генерации тонких плёнок [13,14]. Одна из основных проблем в экспериментах по осаждению кластеров на поверхность- это дальнейшая судьба кластеров. При этом частицы сразу после падения на поверхность могут фрагментироваться или частично проникать в глубь этой поверхности, а в дальнейшем диффундировать по поверхности и образовывать агрегации кластеров или кластерных фрагментов.

На первых этапах работы с новым кластерным источником мы занимались процессами осаждения меди на подложки из монокристаллического кремния. На Рис.5 представлен снимок, полученный для кластеров Cu на поверхности Si с ориентацией [111] при небольшой плотности их скопления. Средние размеры частиц на снимке колеблются в пределах от 9 до 20 нм.

Существует множество работ по моделированию процессов осаждения кластеров на разнообразные поверхности и при разнообразных условиях [15], которые чрезвычайно ценны для понимания общих особенностей процесса осаждения и отслеживания эволюции системы в целом.

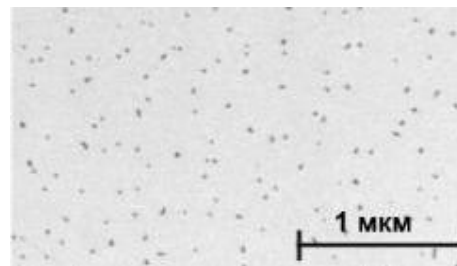


Рис.5. Изображение частиц Cu на поверхности кремния

На Рис.6. можно проследить дальнейшую судьбу частиц Cu, осажденных на поверхности кремния за 500 лазерных импульсов, где они начинают объединяться во фрактально подобные островки. Для сравнения здесь же приведено компьютерное моделирование диффузионно-ограниченной модели скопления частиц для подобной скорости осаждения, которое приведено в работе [16].

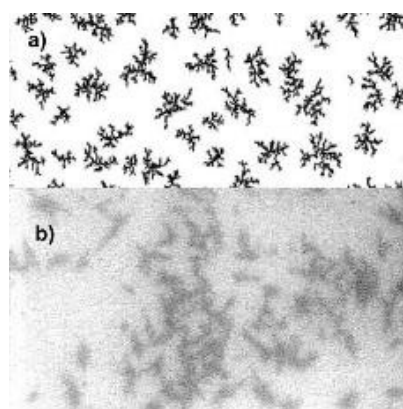


Рис.6. Скопление частиц на поверхности: Результат компьютерного моделирования по работе [16](а); частицы Cu, осаждённые на кремнии (б)

Следующий снимок (Рис.7) показывает развитие процессов, происходящих на поверхности образца, покрытого пленкой меди за 5400 импульсов лазера. Для наглядности происходящих процессов на изображении, полученное с электронного микроскопа были наложены светотени. Видно, что в плёнке произошла коалесценция, в результате которой зёрна меди укрупнились и приобрели куполообразную форму.

При использовании в качестве газа носителя инертного газа можно производить плёнки испарённого с мишени материала, в то время как использование реактивного газа или его смеси с инертным газом даёт воз-

можность получения в результате его реакции с материалом испаренным лазером соединений типа оксидов или нитридов.

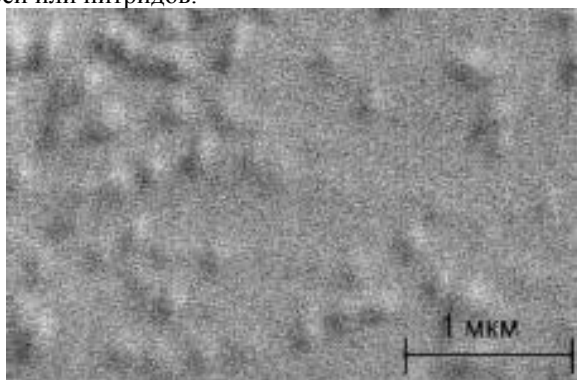


Рис.7. Плёнка Cu, полученная за 5400 импульсов лазера на поверхности Si

В дальнейших исследованиях мы планируем заниматься получением кластеров, образованных такими молекулами как ZnO, TiN<sub>x</sub>, TiO<sub>2</sub> с последующим их осаждением в качестве тонкопленочных покрытий.

Таким образом, описанный выше источник даёт возможность использовать его в различных приложениях. Имеет простую конструкцию, выполненную вне вакуумного объёма, что упрощает его юстировку и замену дисков мишеней. К недостаткам описанной установки следует отнести использование монополюсного масс-сепаратора, особенности работы которого дают возможность регистрации спектров лишь малых кластеров в массовом диапазоне до 350 а.е.м.

Следующим этапом развития нашей системы будет установка в неё энергофильтра и использование время-пролётных методик для регистрации и отбора кластеров необходимой массы и энергии, а также использование перемещающегося подложкодержателя с нагревателем для использования в экспериментах по напылению плёнок.

#### CLUSTER BEAM SOURCE OF EXTERNAL PRODUCTION WITH LASER EVAPORATION FOR WIDE APPLICATION

V.A. Baturin, A.Yu. Karpenko, S.A. Pustovoytov

A cluster beam source with a target laser evaporation which operate in a pulsed regime have been described. A source different peculiarity is its external production that simplyfies a laser alignment and gives a possibility of a source usage for different applications. In source structure a electromagnetic valve, which operates on base of an impact mechanism and allows to obtain the short gas pulses with duration  $\geq 50 \mu s$ , is used as a gas shut. The different matter cluster generation is possible. At usage reactive gas instead of inertness buffer gas we can obtain the such new molecules as, for example, ZnO, TiN<sub>x</sub> and TiO<sub>2</sub> or/and the thin-film coatings with their usage. The some preliminary results of the experimental works with usage of this source have been presented.

#### ДЖЕРЕЛО КЛАСТЕРНОГО ПУЧКА ЗОВНІШНЬОГО ВИКОНАННЯ З ЛАЗЕРНИМ ВИПАРЮВАННЯМ ДЛЯ ШИРОКОГО ЗАСТОСУВАННЯ

В.О. Батурін, О.Ю. Карпенко, С.О. Пустовойтов

Описане кластерне джерело з лазерним випарюванням мішені, що працює в імпульсному режимі. Відмінною особливістю джерела є його зовнішнє виконання, що спрощує юстировку лазера та дає можливість застосовувати джерело для використання в різних застосуваннях. В складі джерела як імпульсний газовий затвор використовується електромагнітний клапан, що працює на основі ударно-бойкового механізму та дозволяє отримувати короткі газові імпульси тривалістю  $\geq 50$  мкс. Можлива генерація кластерів різноманітних речовин, а при застосуванні замість інертного буферного газу – реактивного, утворення нових молекул, таких, наприклад, як ZnO, TiN<sub>x</sub> і TiO<sub>2</sub> та осадження тонкоплівчатих

#### ЛИТЕРАТУРА

1. M. Faraday Experimental relations of gold (and other metals) to light // *Philosophical Transactions of the Royal Society*. 1857, v.147, Part I, p.145-181.
2. А.В. Елецкий, Б.М. Смирнов // *УФН* 1989, т.159, вып.1, №9, с.45-81.
3. C.N. Ramachandra Rao, Giridhar U. Kulkarni, P. John Thomasa, Peter P. Edwards, Metal nanoparticles and their assemblies // *Chem. Soc. Rev.* 2000, v.29, p.27-35.
4. C.W.S. Conover, Y.J. Twu, Y.A. Yang, L.A. Bloomfield // *Rev. Sci. Instrum.* 1989, v.60, p.1065-1070.
5. Y.K. Bae, P.C. Cosby, M. Nicholson, W. Olson // *Rev. Sci. Instrum.* 1991, v.62, №5, p.1157-1162.
6. R.E. Smalley // *Laser Chem.* 1983, v.2, p.167.
7. P. Milani, W.A. deHeer // *Rev. Sci. Instrum.* 1990, v.61, №7, p.1835-1838.
8. S. Maruyama, L.R. Anderson, R.E. Smalley // *Rev. Sci. Instrum.* 1990, v.61, №12, p.3681-3693.
9. В.А. Батурин, А.Ю. Карпенко и др. // *Вопросы Атомной Науки и Техники*. 2006, №1(15), с.130-134.
10. В.А. Батурин, А.Ю. Карпенко и др. // *ИТЭ*. 2004, №3, с.156-160.
11. Г.И. Димов // *ИТЭ*. 1968, №5, с.168-171.
12. В.А. Батурин, А.Ю. Карпенко, С.В. Коляничко // *Вісник СумДУ*. 2004, №8(67), с.138-143.
13. Eric F. Rexer et. al. // *Rev. Sci. Instrum.* 1998. v.69, №8, p.3028-3033.
14. R.L. DeLeon, et al. // *J.Phys.Chem.* 1996, v.100, p.10707.
15. J.D. Weinstein, et al. // *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.* 1994, v.B88, p.74
16. L. Bardotti, et al. // *Phys. Rev. Lett.* 1995, v.74, p.4694-4697.

покриттів з їх використанням. Наведені деякі перші результати експериментальних робіт з використанням цього джерела.