

## ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ УСТАНОВКА ДЛЯ ПОЛУЧЕНИЯ КЛАСТЕРНЫХ ПУЧКОВ

*В.А. Батурин, А.Ю. Карпенко, П.А. Литвинов, С.А. Пустовойтов*

*Институт прикладной физики НАН Украины,  
40030, г. Сумы, ул. Петропавловская 58, Украина; E-mail: baturin@ipflab.sumy.ua*

Рассматривается экспериментальная установка для получения кластерных пучков. Описана простая конструкция источника кластерных ионов, который способен генерировать пучки нейтральных и ионизированных кластеров как газообразных, так и твёрдых веществ. Приведены первые результаты экспериментальных исследований, полученных на этой установке.

### ВВЕДЕНИЕ

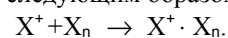
В последнее время в связи с целым рядом приложений и расширением фундаментальных исследований всё больший интерес проявляется к генерации кластеров. Это переходные объекты между изолированными атомами или молекулами и твёрдым телом [1,18]. Они занимают промежуточное положение между ван-дер-ваальсовыми молекулами, содержащими несколько атомов, и такими мелко дисперсионными частицами, как аэрозоли. Нижний предел числа частиц в кластере составляет единицы, а верхний определяется тем, что добавление ещё одной частицы к их совокупности заметно изменит свойства системы в целом. Свойства атомных кластеров очень сильно и даже качественно отличаются от свойств макроскопических тел, что и обуславливает интерес, проявляемый к ним [1]. Наиболее удобно использовать кластеры в качестве пучков заряженных частиц. Это упрощает их транспортировку и применение, а также выделение кластеров выбранного размера масс-спектрометрическими методами [2,3]. Использование кластерных пучков представляет интерес в процессах ионной имплантации, при эпитаксии многомолекулярных соединений, для получения тонких плёнок [4-9] и новых материалов [10-13].

В настоящей работе представлены экспериментальная установка, разработанная в Институте прикладной физики НАН Украины для получения и исследования кластерных пучков, а также конструкция источника кластерных ионов, который способен генерировать пучки нейтральных и ионизированных кластеров как газообразных, так и твёрдых веществ. Кратко изложены результаты первых экспериментов, полученные на этой установке.

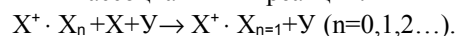
### ИСТОЧНИК КЛАСТЕРОВ

Являясь промежуточным звеном между молекулярным и конденсированным состоянием вещества, кластеры могут эффективно образовываться из газовой фазы во время конденсации газов.

Элементарный процесс роста кластерного иона можно записать следующим образом:



Однако в большинстве случаев канал двухчастичной реакции невозможен, так как возникает сложность с диссипацией избыточного тепла реакции [3]. Рост кластерного иона происходит в серии трехчастичных ассоциативных реакций:



В этом процессе ион  $X^+$  служит остовом для следующей ассоциации. Избыточное тепло этой реакции может рассеиваться в виде энергии поступательного движения или внутренней энергии третьей частицы  $Y$ .

Необходимо отметить различие в величине взаимодействий регулирующих рост кластера в реакции ионно-молекулярной ассоциации и в реакции ассоциации между двумя нейтральными частицами. В первом случае происходит сильное взаимодействие -ионно-нейтральная поляризация, а во втором – слабое взаимодействие Ван-дер-Ваальса.

Сильное охлаждение газа можно получить в газодинамическом сопле при сверхзвуковом расширении газа в вакуум. Таким образом, в самом простом случае источник кластеров должен состоять из следующих конструктивных элементов (рис. 1):

- 1 – камеры, в которой рабочий газ находится под высоким давлением;
- 2 – вакуумной камеры;
- 3 – сверхзвукового сопла, соединяющего эти две камеры.

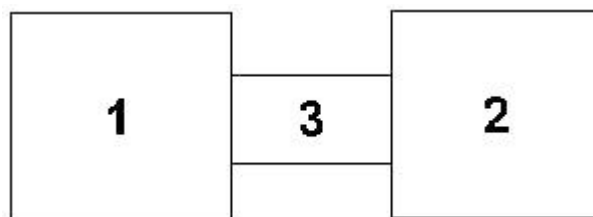


Рис. 1. Блок-схема конструктивных элементов кластерного источника

Эта блок-схема лежит в основе большинства конструкций источников кластерных пучков.

Для получения кластеров из твёрдых материалов их подвергают испарению различными способами [14-17]. Далее атомарный пар смешивается с буферным газом и расширяется через сопло в вакуум. Расширяясь, эта смесь охлаждается, что вызывает конденсацию газа с образованием кластеров. Более детальное рассмотрение методов генерации кластерных пучков проведено в [1,18].

Принцип действия представленного здесь кластерного источника основан на испарении вещества под действием лазерного излучения, когда небольшое количество вещества мишени испаряется, а затем смешивается с потоком инертного газа-носителя, который охлаждает пар. Образованная таким образом смесь затем расширяется в вакуум с образованием кластеров. При этом нагрев ограничивается небольшим участком мишени, так что отсутствует необходимость в теплозащите и охлаждении.

Благодаря этим качествам источники с лазерным испарением находят всё более широкое распространение во многих лабораториях с некоторыми модификациями отдельных конструктивных элементов источника, в зависимости от конкретного его приложения и технических возможностей лабораторий [4,5, 14, 19, 20].

На рис.2 показано продольное сечение источника кластерного пучка. Он работает в импульсном режиме, что позволяет существенно уменьшить газовую нагрузку на вакуумную систему по сравнению с непрерывным напуском и получать более высокие интенсивности пучков.

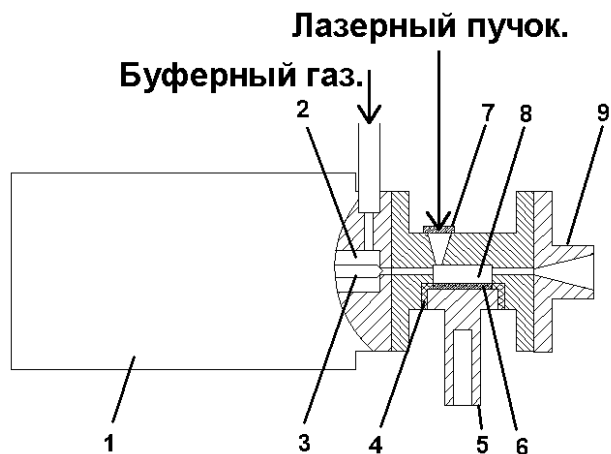


Рис. 2. Схема источника кластеров:

1 - электромагнитный клапан; 2 - камера высокого давления; 3 - запорная игла; 4 - тефлоновая вставка; 5 - вращающийся подложкодержатель; 6 - мишень; 7 - вход лазера; 8 - камера подготовки; 9 - расширительный конус

В источнике используется короткоимпульсный электромагнитный клапан 1, работающий на основе ударно-бойкового механизма. Конструкция этого клапана и его основные характеристики описаны в

[21]. При разработке этого клапана основным требованием выдвигалась возможность получения высокоинтенсивных газовых импульсов длительностью 50...100 мкс и высокой крутизной переднего фронта, которые являются наиболее предпочтительными для работы сверхзвукового кластерного источника [20, 22].

В нормальном состоянии в камеру высокого давления клапана 2 подается буферный газ под давлением в несколько атмосфер. При срабатывании клапана запорная игла 3 приподнимается над седловиной, и короткий, быстронарастающий импульс буферного газа, проходя через отверстие в корпусе кластерного источника диаметром 1мм, поступает в камеру подготовки 8. Здесь буферный газ перемешивается с факелом лазерной плазмы, который получается в результате лазерного испарения мишени 6. Далее основной поток газа проходит через выходное отверстие до расширительного конуса 9 и расширяется в вакуум.

Пучок испарительного АИГ(Nd) лазера попадает в камеру подготовки через отверстие 7, высверленное в медном корпусе кластерного источника, и имеющее конусную форму для упрощения юстировки лазера. Используются диски-мишени, диаметром 10 мм, наклеенные на вращающийся подложкодержатель 5. Уплотнение подложкодержателя с блоком сопла осуществляется при помощи фторопластовой вставки 4, по которой он скользит во время вращения. При юстировке лазера подложкодержатель с мишенью убирается, что позволяет пучку лазера выходить со стороны мишени. Во время работы кластерного источника диск-мишень перед каждым срабатыванием лазера перемещается на некоторое расстояние, подобранное так, чтобы испарение материала мишени происходило с нового пятна.

## ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ УСТАНОВКА

На рис.3 показано продольное сечение экспериментальной установки для получения и исследования кластерных пучков. Сверхзвуковой источник кластерного пучка размещается в 100-литровой вакуумной камере 1, откачиваемой до давления  $5 \cdot 10^{-4}$  Па. Откачка ведётся диффузионным насосом с производительностью 2500 л/с, в который залит полифениловый эфир  $C_{20}H_{22}O_4$  с низким давлением насыщенных паров. При работе кластерного источника с давлением буферного газа на входе импульсного клапана в несколько атмосфер, длительностью газового импульса  $\sim 100$  мкс и частотой повторения до 10 Гц, вакуум в камере изменяется на незначительную величину. Буферный газ под высоким давлением подается в камеру высокого давления импульсного клапана по медной трубке через штуцер 4.

Для испарения рабочего вещества используется АИГ(Nd) лазер 2, работающий в режиме модуляции добротности. Он крепится на верхнем фланце установки. Лазерный импульс с длиной волны 1064 нм,

средней энергией 6 мДж/имп., длительностью 20 нс и диаметром пятна в фокусе ~100 мкм через оптическую систему 3 попадает в камеру подготовки кластерного источника, где происходит испарение мишени, вращаемой при помощи привода 6.

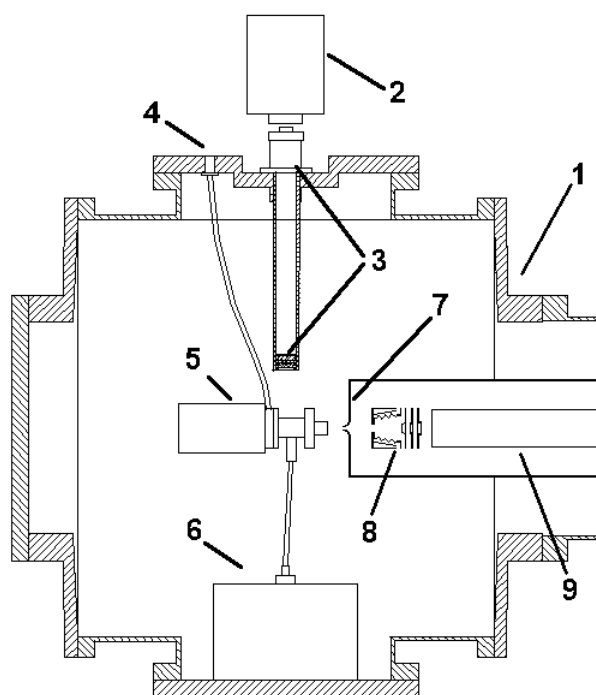


Рис. 3. Продольное сечение экспериментальной установки для получения кластерных пучков: 1 - вакуумная камера; 2 - АИГ(Nd) лазер; 3 - оптическая система фокусировки лазерного пучка; 4 - штуцер подачи газа; 5 - кластерный источник; 6 - привод вращения мишени; 7 - сепараторная диафрагма; 8 - система ионизации кластеров и формирования пучка; 9 - монополюсный масс-спектрометр

После расширения в вакуум газовый поток попадает на изготовленную из никеля сепараторную диафрагму 7, расположенную на расстоянии 25 мм от источника. Диафрагма выделяет из струи центральную часть пучка диаметром 2 мм. Далее пучок проходит через систему ионизации и формирования 8, где нейтральные кластеры могут быть ионизированы электронным ударом. Пучок заряженных кластерных частиц регистрируется монополюсным масс-спектрометром 9, либо цилиндром Фарадея.

Для получения временной воспроизводимости кластерного пучка необходима точная синхронизация момента испарения с моментом открывания газового клапана. Специально разработанное устройство позволяет синхронизировать эти события с точностью до микросекунд и регулировать временную задержку между ними.

## РЕЗУЛЬТАТЫ

Отдельно были проведены исследования характе-

ристик газового импульса, поступающего в камеру подготовки источника. При этом импульсный клапан отсоединялся от камеры источника. Временные характеристики газовых импульсов на выходе клапана регистрировались при помощи специально изготовленного импульсного ионизационного манометра, по методике описанной в [23]. На рис.4 показана типичная осциллограмма газового импульса (гелия) при давлении на входе клапана 0,3 МПа.

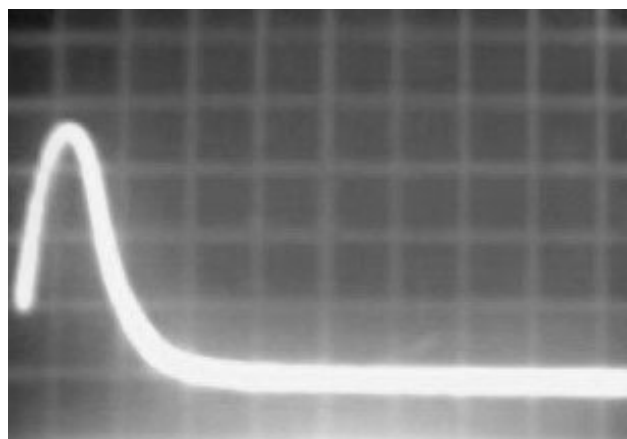


Рис.4. Осциллограмма газового импульса, зарегистрированная ионизационным манометром (масштаб развертки 50 мкс/дел.). Давление газа на входе 0,3 МПа

Известно, что сверхзвуковое расширение газа в вакуум приводит к образованию кластеров в молекулярном пучке. Для регистрации массового спектра в импульсном пучке на аналоговый выход монополюсного масс-спектрометра был подключен универсальный запоминающий осциллограф С8-14, с которого снимались данные интенсивности пиков выделенной массы. Спектр полученных с источника кластеров He, ионизированных электронным пучком, показан на рис.5. Как и в работе [23] мы наблюдаем кластеры He с магическими числами 7, 10.

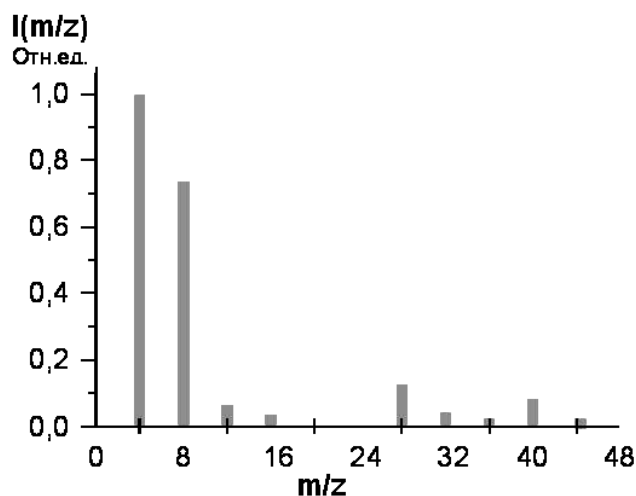


Рис.5. Спектр нейтральных кластеров He, ионизированных электронным пучком

В наших первых экспериментах по получению

кластерных пучков твердых веществ мы использовали углеродную мишень. Характеристики кластерного пучка существенно зависят от времени задержки между лазерным и газовым импульсами. Поэтому предварительно проводились эксперименты по оптимизации этой временной задержки. Для этого измерялись зависимости общего тока кластерного пучка от временной задержки. Общий ионный ток импульсного кластерного пучка измерялся цилиндром Фарадея, который был установлен за сепараторной диафрагмой. На рис.6 показана осциллограмма сигнала, снятого с цилиндра Фарадея, полученная при импульсном распылении графита марки МПГ6 при ускоряющем напряжении 180 В и давлении буферного газа 0,3 МПа. Максимальные токи на цилиндр Фарадея были получены при задержке ~200 мкс между моментами открывания газового клапана и лазерного испарения и достигали 200 нА.

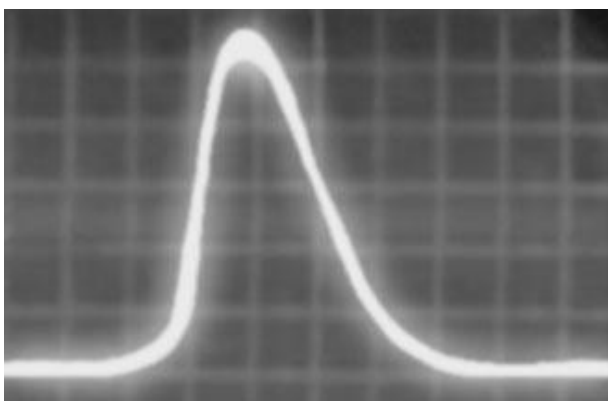


Рис. 6. Осциллограмма сигнала, снятого с цилиндра Фарадея, полученная при импульсном распылении графита МПГ6 (масштаб развертки 200 мкс/дел.)

На металлические подложки нами были осаждены углеродные плёнки. Они имели однородную морфологию, толщину ~ 300 нм и получались за 5400 лазерных импульсов. Фотография плёнки углерода, выполненная на электронном микроскопе с увеличением в 10000 раз, показана на рис. 7.

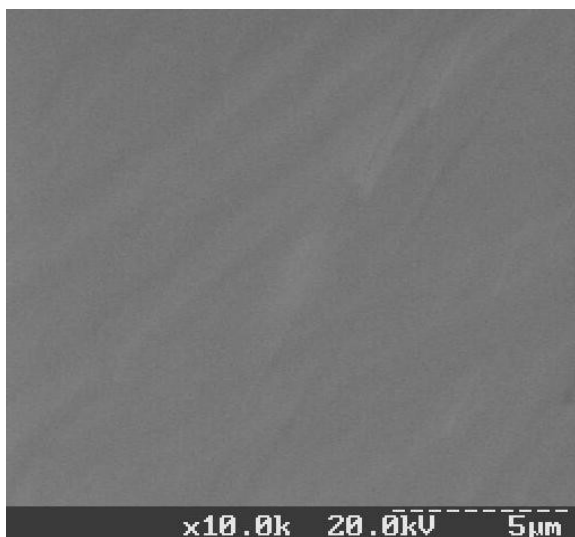


Рис. 7. Снимок углеродной плёнки, полученной из пучка углеродных кластеров при давлении буферного газа 0,25 МПа

Исследование влияния различных режимов напыления на качество получаемых плёнок показало, что при максимальных токах углеродного пучка на поверхности плёнок наблюдались макроскопические частицы углерода. Этот эффект объясняется тем, что в данном режиме работы источника плотность кластеров получается высокой из-за того, что такие вещества, как углерод, чрезвычайно легко конденсируются при высокой температуре. Это приводит к тому, что начинают преобладать процессы рекомбинации ионов и агрегации, в результате чего образуются макроскопические аэрозольные частицы. Образование таких частиц в источнике кластеров описано в работе [20]. Снимок плёнки с увеличением в 1200 раз, полученной в этом режиме, показан на рис.8.

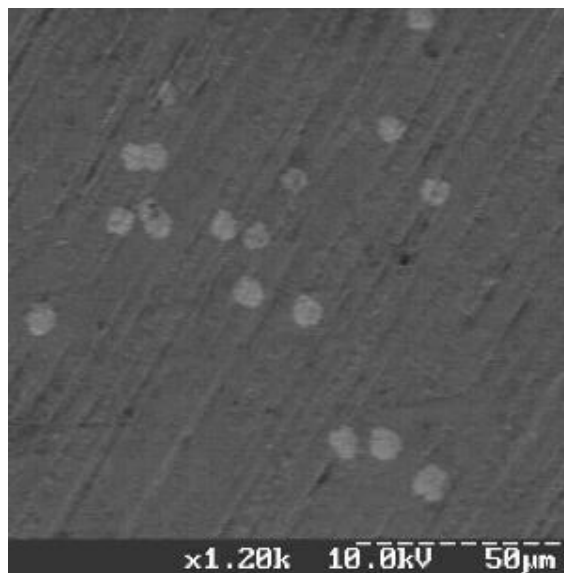


Рис. 8. Снимок углеродной пленки, полученной в режиме с образованием аэрозольных частиц

Снятый на монопольном масс-спектрометре спектр положительно заряженных кластеров углерода приведён на рис. 9.

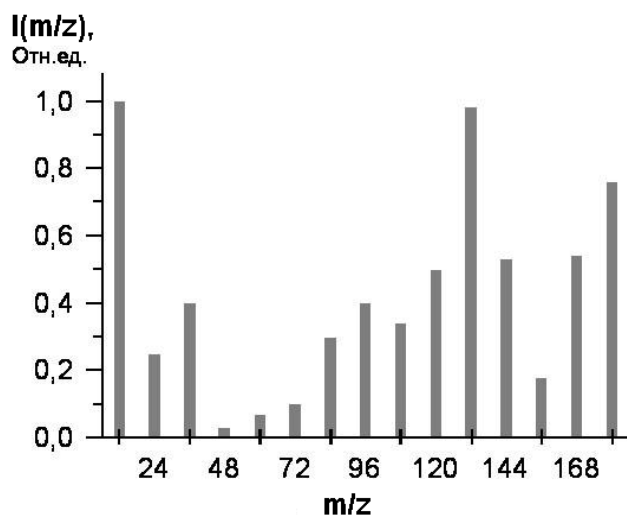


Рис. 9. Спектр малых кластеров углерода, полученный на монополюсном масс-спектрометре

## ВЫВОДЫ

Была разработана и изготовлена экспериментальная установка для получения кластерных пучков. Основой установки является источник, работающий на принципе лазерного испарения вращающейся мишени, которая установлена на импульсном сверхзвуковом клапане. Особенности работы используемого монополюсного масс-спектрометра дают возможность измерять лишь спектры малых кластеров в диапазоне масс до 350 а.е.м. В дальнейшем мы планируем снять это ограничение, используя времяпролетный масс-спектрометр. Имеется возможность получения тонких плёнок путём осаждения на подложку частиц из кластерного пучка. Использование в качестве газа-носителя не инертных газов даёт возможность применять реактивное лазерное распыление для получения плёнок бинарных веществ [5].

## ЛИТЕРАТУРА

1. А.В. Елецкий, Б.М. Смирнов // *УФН*. 1989, т.159, в.1, №9, с.45-81.
2. С.W.S. Conover, Y.J. Twu, Y.A. Yang, L.A. Bloomfield // *Rev. Sci. Instrum.* 1989, v.60, p.1065-

- 1070.
3. Y.K. Bae, P.C. Cosby, M. Nicholson, W. Olson // *Rev. Sci. Instrum.* 1991, v.62, №5, p.1157-1162.
4. R. Alayan et al. // *Rev. Sci. Instrum.* 2004, v.75, №7, p.2461-2470.
5. Eric F. Rexer et al. // *Rev. Sci. Instrum.* 1998, v.69, №8, p.3028-3033.
6. I. Yamada, T. Takagi // *J. Vac. Sci. Technol.* 1989, v. A.4, p.52.
7. G.H. Takaoka, I. Yamada, T. Takagi // *J. Vac. Sci. Technol.* 1985, v. A3, p. 2665.
8. T. Takagi // *Vacuum*. 1986, v.36, p.27.
9. I. Yamada, Husui, T. Takagi // *J. Phys. Chem.* 1987, v.91, p.2463.
10. B. Plapant et al. // *Phys. Rev.* 1998, v.B57, p.1963.
11. M.B. Knickelbein // *Phys. Rev. Lett.* 2001, v.86, p.5255.
12. A.J. Cox et al. // *Phys. Rev.* 1994, v.B.49, p.12295.
13. В.В. Бражник, А.Г. Ляпин // *УФН*. 1996, том 166, №8, с.893-897.
14. R.E. Smalley // *Laser. Chem.* 1983, v.2, p.167.
15. H. Haberland et al. // *J. Vac. Sci. Technol.* 1992, v.A30, p.3266.
16. W. Begemann et al. // *Z. Phys.* 1989, v.D12, p. 229.
17. Г.Л. Месяц // *УФН*. 1995, том 166, с.601.
18. Б.М. Смирнов // *УФН*. 2003, том 173, №6, с.609-648.
19. P. Milani, W.A. deHeer // *Rev. Sci. Instrum.* 1990, v.61, №7, p.1835-1838.
20. S. Maruyama, L.R. Anderson, R.E. Smalley // *Rev. Sci. Instrum.* 1990, v.61, №12, p.3681-3693.
21. В.А. Батулин, А.Ю. Карпенко, П.А. Литвинов и др. // *ПТЭ*. 2004, №3, с.156-160.
22. O. Cheshnovsky, K.L. Taylor, J. Conceicao, R.E. Smalley // *Phys. Rev. Lett.* 1990, v.64, p.1785.
23. P.M. Stephens, J.G. King // *Phys. Rev. Lett.* 1983, v.51, p.1538.
24. В.А. Батулин, А.Ю. Карпенко, С.В. Колянко // *Вісник СумДУ*. 2004, №8(67)? с.138-143.

## ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНА УСТАНОВКА ДЛЯ ОТРИМАННЯ КЛАСТЕРНИХ ПУЧКІВ

*В.А. Батулін, А.Ю. Карпенко, П.А. Литвінів, С.А. Пустовоїтов*

Розглядається експериментальна установка для отримання кластерних пучків. Описана проста конструкція джерела кластерних іонів, яке здатне генерувати пучки нейтральних і іонізованих кластерів як газоподібних, так і твердих речовин. Приведені перші результати експериментальних досліджень одержаних на цій установці.

## EXPERIMENTAL SETTING FOR THE GETTING OF CLUSTER BEAMS

***B.A. Baturin, A.Yu. Karpenko, P.A. Litvinov, S.A. Pustovoytov***

The experimental setting for the getting of cluster beams is considered. Simple construction of source of cluster ions, which is able to generate the beams of clusters of matters both gaseous, and hard neutral and ionized, is described. The first results of experimental researches of got on this setting are resulted.