

02;04;07

Перколяция при лазерной абляции бинарных мишеней

© Н.Е. Каск, С.В. Мичурин

НИИ ядерной физики им. Д.В. Скобельцина
при МГУ им. М.В. Ломоносова, Москва
E-mail: nek@srd.sinp.msu.ru

Поступило в Редакцию 3 ноября 2004 г.

Проведены спектральные исследования плазмы, разлетающейся в окружающий газ при абляции бинарных сплавов и порошковых смесей наносекундными лазерными импульсами умеренной интенсивности. Впервые изучены зависимости интенсивностей спектральных линий от состава мишени. Установлено, что в плазме реализуется трехмерная перколяция, порог которой определяется атомной плотностью металлического компонента в составе мишени.

Введение. Образование нанокластеров при импульсной лазерной абляции активно изучается в последние годы в связи с задачами нанотехнологии. Параметры лазерной плазмы зависят от условия облучения и быстро меняются после действия моноимпульса. Динамика разлета плазмы в окружающий газ, ее компонентный состав и различные процессы, протекающие в ней, такие как поглощение лазерного излучения, нагрев, ионизация, рекомбинация, конденсация и кластеризация зависят, в частности, от внешнего давления, создаваемого окружающим газом. Согласно [1], при давлениях меньше 1 Па имеет место свободное адиабатическое расширение плазмы. Столкновение плазменных частиц с атомами окружающего (буферного) газа начинает сказываться при давлениях ~ 10 Па, при этом наблюдается заметный рост интенсивности свечения факела через $1-2 \mu\text{s}$ после окончания лазерного импульса. В случае разлета плазмы в вакуум при абляции алюминиевой [1] и кремниевой [2] мишеней из соотношения интенсивностей ионных линий следует, что температура плазмы достигает максимума ($\sim 10^4$ К) к концу действия лазерного импульса и затем с характерным временем $\sim 10^{-7}$ s убывает. Очевидно, что последующий рост интенсивности вспышки, наблюдаемый через микросекундные времена при разлете плазмы в окружающий газ, является следствием изменения ее излу-

чательной (и поглощательной) способности в результате процессов конденсации и кластеризации.

Интенсивность излучения со сплошным спектром, как показывают наши предыдущие исследования [3–5] для случая миллисекундного диапазона длительностей воздействия, коррелирует с характерным для перколяции пороговым поведением высокочастотной проводимости лазерной плазмы в зависимости от состава мишени и появлением наноструктур фрактальной природы. С ростом внешнего давления эффективные яркостная и цветовая температуры, характеризующие континуум излучения, скачком увеличиваются до значений, превышающих температуру кипения материала мишени [6]. При этом меняется форма и размеры факела, а в его периферийных слоях формируется макроскопическая фрактальная оболочка [5]. Сплошной спектр свечения плазмы и ее высокая СВЧ-проводимость связаны с присутствием в объеме факела перколяционных кластеров, которые в отличие от компактных кластеров не исчезают при превышении температуры кипения материала. Условие их существования сводится к тому, чтобы плотность среды была выше некоторого критического значения. Перколяция должна иметь место и при абляции мишеней короткими лазерными импульсами, так как чем больше интенсивность потока, тем большую плотность имеет приповерхностная плазма. Экспериментальные исследования плазмы в наносекундном диапазоне длительностей осложняются процессами деградации плазмы и требованиями высокого временного разрешения к регистрирующей аппаратуре. Альтернативный путь для изучения процесса кластеризации открывают методики, разработанные для изучения перколяции в плазме лазерного факела у поверхности композитных мишеней и спектральных особенностей в континууме ее излучения [3–6].

В статье представлены результаты экспериментального исследования перколяции в плазме, возникающей у поверхности бинарной мишени под действием лазерного излучения наносекундной длительности.

Экспериментальная установка и методики. Описание установки, позволяющей проводить исследования спектров свечения лазерного факела в широком диапазоне давлений ($1 \div 10^7$ Pa) буферного газа, приведено в [6]. В настоящей работе абляция бинарных мишеней осуществлялась моноимпульсным излучением Nd:YAG-лазера с параметрами; $\lambda = 1.06 \mu\text{m}$, импульс с длительностью ~ 10 ns и энергией ~ 10 mJ, плотность мощности в пятне облучения $\sim 10^8$ W/cm².

Изучались спектры лазерной плазмы, возникающей у поверхности как спрессованных порошковых смесей, так и сплавов ($\text{Cu}_x\text{Al}_{(1-x)}$ и $\text{Cu}_x\text{Ni}_{(1-x)}$). Плавление порошковой смеси осуществлялось в электрической дуге между вольфрамовыми электродами в аргоновой атмосфере нормального давления.

Контрольные эксперименты с повторным воздействием позволили выбрать оптимальные режимы облучения поверхности, исходя из повторяемости изучаемого сигнала для двух последовательных импульсов. В случае сплавов это были первый и второй импульс, а в случае порошковой смеси — второй и третий, после которых мишень перемещалась. Геометрия облучения и параметры лазерного импульса не изменялись в процессе измерения зависимости. Свечение принималось в направлении, перпендикулярном оси факела, из области плазмы, удаленной от поверхности мишени на расстояние ≈ 1 мм. Следует отметить, что размеры и форма факела, в основном зависящие от интенсивности лазерного импульса и величины давления, создаваемого окружающим газом [2], оставались неизменными при изучении зависимостей от состава мишени. Влияние состава мишени на эффективные температуры лазерной вспышки являлось одной из задач настоящей работы. Установленное в экспериментах заметное превышение эффективной цветовой температуры ($T_{col} \geq 5000$ К) над яркостной ($T_{br} \leq 3000$ К) в видимом диапазоне длин волн свидетельствует о том, что слой плазмы являлся оптически тонким. Поглощением излучения на частотах дискретного спектра также пренебрегалось, поскольку для исследования, как правило, выбирались спектральные линии со слабой интенсивностью, соответствующие переходам побочных серий.

При анализе экспериментальных зависимостей предполагалось, что компоненты мишени равномерно распределены в объеме факела, а их относительные плотности в испаренном веществе не меняются по сравнению с их содержанием в мишени. Доля свободных атомов в лазерной плазме определялась исходя из интенсивности атомарных дискретных спектров.

Экспериментальные результаты. При абляции бинарных сплавов меди с алюминием и никелем изучалось поведение интенсивности спектральных линий, принадлежащих атомам Cu ($\lambda = 0.5105 \mu\text{m}$), Al ($\lambda = 0.3961 \mu\text{m}$) и Ni ($\lambda = 0.5477 \mu\text{m}$). На рис. 1, *a* и *b* представлены зависимости интенсивностей спектральных линий металлов, входящих в состав бинарного сплава, от относительного числа атомов меди в

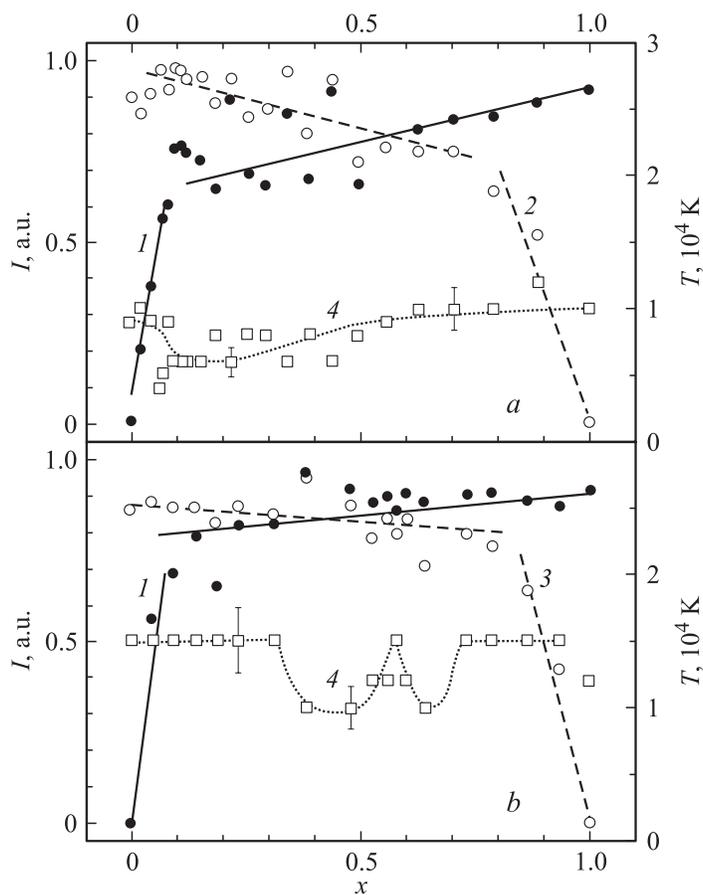


Рис. 1. Поведение интенсивностей спектральных линий в зависимости от состава мишени (x — относительная концентрация атомов меди) при давлении буферного газа 10^5 Па. *a* — сплав $\text{Cu}_x\text{Al}_{(1-x)}$, аргон; *b* — сплав $\text{Cu}_x\text{Ni}_{(1-x)}$, воздух. 1 — атомы Cu ($\lambda \approx 0.5105 \mu\text{m}$); 2 — атомы Al ($\lambda \approx 0.3964 \mu\text{m}$); 3 — атомы Ni ($\lambda \approx 0.5477 \mu\text{m}$); 4 — эффективная цветовая температура вспышки.

мишени. Экспериментальные результаты получены при нормальном давлении буферного газа (аргон для сплава $\text{Cu}_x\text{Al}_{(1-x)}$ и воздух для $\text{Cu}_x\text{Ni}_{(1-x)}$).

В отсутствие поглощения излучения интенсивность спектральной линии должна быть пропорциональна плотности соответствующей компоненты в объеме факела, если при этом существенно не изменяются ее ширина и контур. Ширины указанных линий не зависят ни от состава мишени, ни от давления буферного газа и составляют на полувысоте 0.37 ± 0.04 , 1 ± 0.05 и 0.4 ± 0.04 nm соответственно. Как следует из рисунков, пропорциональность между интенсивностью спектральной линии и плотностью соответствующего компонента в плазме нарушается, когда относительная атомарная плотность начинает превышать значение $n_a \sim 0.15$ — величину, характерную для порога в случае трехмерной перколяции [7]. Естественно предположить, что насыщение атомарных спектров (рис. 1) является следствием ограничения плотности числа свободных атомов в плазме факела в результате образования связанных структур — кластеров. Поскольку модель компактных кластеров не соответствует довольно высокой газовой температуре плазмы (~ 1 eV) в момент действия лазерного импульса [2], когда наиболее интенсивно излучение в спектральных линиях, то на роль „горячих“ связанных структур больше подходят модель газоподобных кластеров [8] и модель перколяционного кластера.

Если значение перколяционного порога на оси составов определять как положение локального максимума или точку излома зависимости, то имеем для случая бинарных сплавов металлов следующие величины: 0.5 ± 0.05 , 0.4 ± 0.04 и 1.3 ± 0.2 nm соответственно для меди, никеля и алюминия. При абляции бинарных металлических мишеней (как сплавов, так и порошковых смесей) перколяционный порог проявляется для каждого компонента отдельно и практически не сказывается на ходе зависимости другого компонента. В случае смеси металла с солью в спектре вспышки помимо дискретных линий металлического компонента и континуума наблюдается также атомарный спектр металла, входящего в молекулу соли. Максимум интенсивности спектральных линий в спектрах алюминия и металла соли приходится на относительную атомарную плотность $n'_a \sim 0.3$ (рис. 2, *a* и *b*). Если эту величину сопоставить с порогом перколяции, то она приблизительно в полтора раза превосходит аналогичную величину для алюминия в случае бинарной смеси металлов. Возможной причиной такого различия является уменьшение свободных атомов алюминия в результате их участия в химических реакциях с образованием фтористых соединений

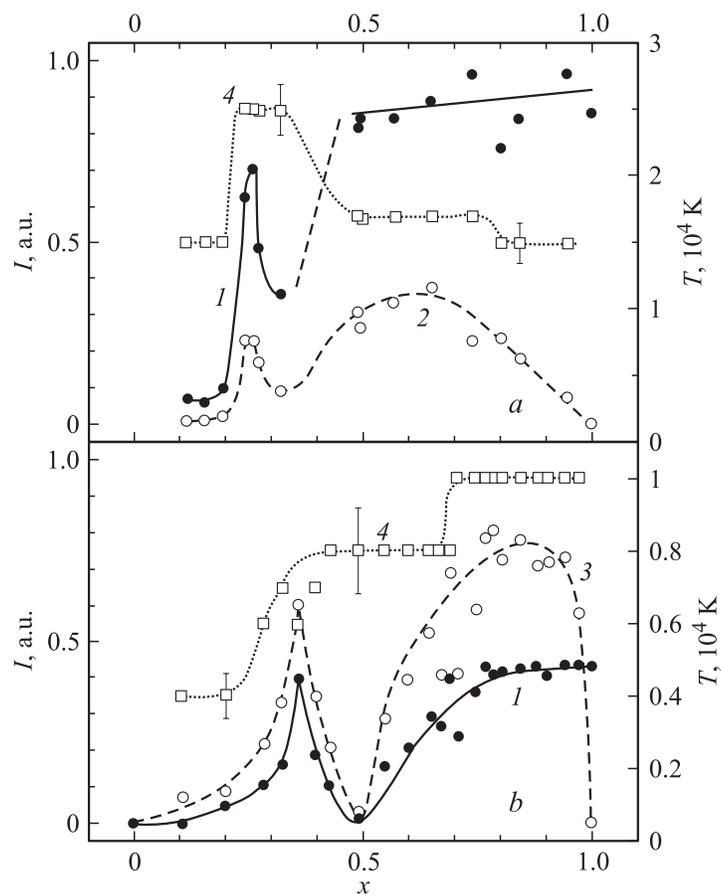


Рис. 2. Поведение интенсивностей спектральных линий в зависимости от состава мишени (x — относительная концентрация атомов алюминия) при давлении воздуха 10^5 Па. *a* — порошковая смесь Al:LiF; *b* — порошковая смесь Al:MgF₂. 1 — атомы Al ($\lambda \approx 0.3964 \mu\text{m}$); 2 — атомы Li ($\lambda \approx 0.4273 \mu\text{m}$); 3 — атомы Mg ($\lambda \approx 0.3838 \mu\text{m}$); 4 — эффективная цветовая температура вспышки.

AlF_n ($n \leq 3$) и освобождением металла, входящего в молекулу соли. В отличие от результатов, полученных для сплавов, выше перколяционного порога интенсивность спектров заметно уменьшается, что

может быть интерпретировано как следствие того обстоятельства, что атомы алюминия, уже вошедшие в состав перколяционного кластера, не принимают участия в химических реакциях.

Следует отметить, что мишень, если она представляет собой порошковую смесь, можно также рассматривать как среду для трехмерной перколяции. Но в таком объекте порог определяется не атомарной плотностью, а соотношением объемов смешиваемых веществ [7]. Представление экспериментальных результатов, приведенных на рисунках, относительно объемной доли компонентов в мишени приводит к значительно большему рассогласованию порогов при переходе от одного соединения к другому (например, для меди в случае сплавов или алюминия в смесях с различными солями).

Альтернативной моделью горячих структур в плотном паре является модель газоподобного кластера с минимальным числом связей между атомами [8]. При достаточно высоких температурах такая структура предстает в виде сомопроизвольно возникающих цепей атомов (виртуальных цепей). Поскольку критическая плотность для образования одномерных структур — перколяционный порог — приближается к единице, такая модель не согласуется с экспериментальными результатами настоящей работы. Подобный аргумент противоречит и модели двухфазного кластера [9], в которой внешний монослой компактного кластера состоит из частиц с малым числом связей. Перколяция в двухмерном слое характеризуется порогом, значение которого равно 0.5. В [10] предложена обобщенная модель виртуальных цепей, в рамках которой кластер в виде фрактально подобной системы связанных цепей атомов очень близок по своей топологии к перколяционному кластеру.

Заключение. Проведенные в настоящей работе исследования показали, что в плазме, возникающей при абляции мишеней в окружающий газ лазерными импульсами наносекундной длительности, существуют трехмерные перколяционные кластеры. Порогом перколяции является критическая атомарная плотность испаренного компонента мишени. „Горячие“ перколяционные кластеры определяют поглощательную способность, температуру и спектральный континуум излучения плазмы.

Работа выполнена при частичной поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (гранты № 03–02–17026 и № НШ–1771.2003.2).

Список литературы

- [1] *Harilal S.S., Bindhu C.V., Tillack M.S.* et al. // J. Appl. Phys. 2003. V. 93. N 5. P. 2380–2388.
- [2] *Tillack M.S., Blair D.W., Harilal S.S.* // Nanotechnology. 2004. V. 15. N 3. P. 390–403.
- [3] *Каск Н.Е.* // Письма в ЖЭТФ. 1994. Т. 60. № 3. С. 204–208.
- [4] *Каск Н.Е., Мичурин С.В., Федоров Г.М.* // ЖЭТФ. 1999. Т. 116. Вып. 6 (12). С. 1979–1989.
- [5] *Каск Н.Е., Лексина Е.Г., Мичурин С.В.* и др. // Квантовая электроника. 2002. Т. 32. № 5. С. 437–442.
- [6] *Каск Н.Е., Мичурин С.В., Федоров Г.М.* // Квантовая электроника. 2004. Т. 34. № 6. С. 524–529.
- [7] *Шкловский Б.И., Эфрос А.А.* Электронные свойства легированных полупроводников. М.: Наука, 1979.
- [8] *Жуховицкий Д.И.* // ЖЭТФ. 1998. Т. 113. № 1. С. 181–191.
- [9] *Жуховицкий Д.И.* // ЖЭТФ. 2002. Т. 121. № 2. С. 396–405.
- [10] *Жуховицкий Д.И.* // ЖФХ. 2001. Т. 75. № 7. С. 1159–1168.