

05.4; 11; 12

© 1992

МЕТОД „КНУДСЕНОВСКОЙ“ СЕТКИ ДЛЯ ИССЛЕДОВАНИЯ СОСТАВА И ЭНЕРГИИ ЧАСТИЦ, ПАДАЮЩИХ НА ПОДЛОЖКУ ПРИ ЛАЗЕРНОМ НАПЫЛЕНИИ ПЛЕНОК

Предтеченский М.Р., Булгаков А.В.,
Майоров А.П., Рошин А.В.

Важными характеристиками, определяющими рост и качество пленок при их напылении, являются состав и энергия осаждаемых частиц. Исследование этих характеристик затруднено тем, что осаждение происходит из непосредственно прилегающего к подложке газового (плазменного) слоя, образующегося при взаимодействии набегающего потока с поверхностью подложки [1-4]. Параметры частиц при прохождении слоя могут изменяться в результате рассеяния, процессов рекомбинации, кластерообразования и др. Основные характеристики этого слоя (размер, состав и концентрация частиц, динамика образования) существенно зависят от соотношения между длиной свободного пробега частиц в потоке λ и характерным размером подложки L [2, 3]. Наибольшие возмущения подложка вносит в случае плотного набегающего потока ($\lambda < L$), когда перед ней формируется скачок уплотнения (ударный слой). Такие режимы взаимодействия потока с подложкой, как правило, реализуются в лазерном методе напыления, для которого типичные значения плотности эрозионной плазмы составляют $10^{14}-10^{16}$ см⁻³ [1, 5].

В данной работе для определения состава и энергии падающих на подложку частиц предлагается метод „кнудсеновской“ сетки, используемый в сочетании с времяпролетной масс-спектрометрией. Метод применен для исследования взаимодействия лазерной плазмы с поверхностью подложки при напылении ВТСП $YBaCuO$ тонких пленок [6].

Суть метода заключается в том, что подложка моделируется тонкой сеткой низкой прозрачности, размер отверстий d в которой меньше средней длины свободного пробега λ в потоке перед подложкой (число Кнудсена $Kn = \lambda/d > 1$), так что падающие частицы взаимодействуют преимущественно с твердой поверхностью, частично отражаются от нее (упруго или диффузно) и формируют приповерхностный слой, а частицы, достигнувшие отверстий, проходят их, не взаимодействуя между собой и не изменяя свои параметры. Непосредственно за сеткой расположена диафрагма, размер которой, с одной стороны, должен быть меньше длины свободного пробега прошедших частиц, а с другой – обеспечивать достаточную интенсивность потока для их регистрации.

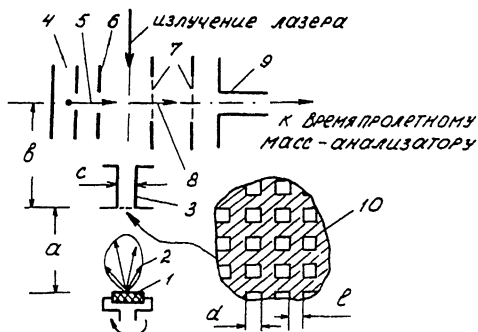


Рис. 1. Схема эксперимента.

1 - мишень на вращающемся держателе, 2 - лазерный факел, 3 - диафрагма ($c = 2,5$ мм), 4 - электронная пушка, 5 - импульсный электронный пучок, 6 - выталкивающий электрод, 7 - сетки высокой прозрачности, 8 - ионный пучок, 9 - отклоняющие пластины, 10 - сетка ($d = 4$ мкм; $l = 5$ мкм). $\alpha = 3$ см - расстояние мишень-сетка; $b = 4$ см - расстояние сетка-точка анализа.

Схема эксперимента показана на рис. 1. Излучение $Nd:YAG$ лазера (1064 нм; 20 нс) фокусировалось на мишень 1 из ВТСП керамики состава $YBa_2Cu_3O_{7-x}$, расположенную в вакуумной камере (давление 10^{-5} Па). Размер пятна фокусировки D и плотность энергии излучения E на мишени варьировались независимо в диапазонах, типичных для метода лазерного напыления ВТСП пленок [5, 6]: $D = 0,2-0,6$ мм; $E = 0,7-4$ Дж/см². Масса испаренного вещества контролировалась взвешиванием мишени до и после эксперимента и составляла $\sim 10^{-6}$ г/импульс. На пути факела 2 на расстоянии $\alpha = 3$ см от мишени устанавливалась нормально потоку никелевая сетка 10 размером 2 x 1 см и толщиной 4 мкм, изготовленная литографическим способом. Размер отверстий в сетке $d = 4$ мкм, прозрачность $\phi = 22\%$. С учетом коэффициента Клаузинга для отверстия в свободномолекулярном режиме $k \approx 0,7$ [7] примерно 15% падающих на поверхность молекул проходят через отверстия. Прощедшие сетку и диафрагму 3 частицы попадали в источник ионов, где ионизовались импульсным электронным ударом (1 мкс, 100 эВ), выталкивались перпендикулярно направлению разлета электрическим импульсом, подаваемым на электрод 6, и анализировались времяпролетным масс-спектрометром типа масс-рефлектор [8, 9]. Для изучения динамики разлета факела во времени варьировалось время задержки между лазерным импульсом и импульсом ионизации. При анализе ионов лазерной плазмы электронная пушка отключалась. Скорости частиц измерялись по величине напряжения на отклоняющих пластинах 9 [8, 9]. Для выявления эффекта подложки сравнивались эксперименты с сеткой и без нее при одинаковых условиях облучения мишени.

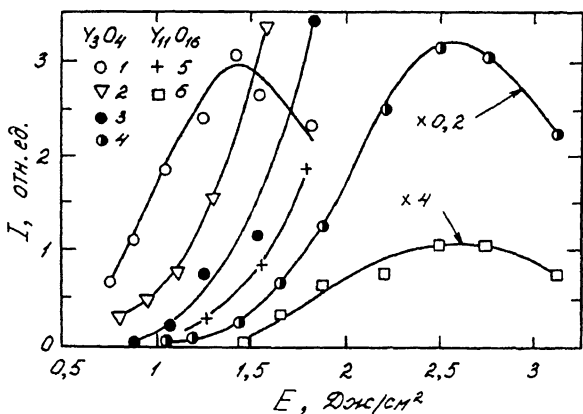


Рис. 2. Зависимости интенсивности кластерных пиков от плотности энергии лазерного излучения в потоке за «кнутсоновской» сеткой (1, 2, 5) и в невозмущенном факеле (3, 4, 6). Диаметр пятна фокусировки D : 2,5 – 0,2 мм; 1,3 – 0,35 мм; 4,6 – 0,6 мм.

Чтобы определить, выполняются ли в эксперименте условия «кнутсоновской» сетки, оценим длины свободного пробега по обе стороны сетки. Плотность частиц в набегающем потоке n_0 оценим, полагая, что N испаренных за импульс атомов равномерно заполняют объем $2\pi r \alpha^3 (2h/D)^4/3$, занимаемый лазерной плазмой, когда ее фронт достигает подложки [4, 10], где $h \approx 0.1$ мм – продольный размер плазмы в момент окончания лазерного импульса τ_1 . Для типичных экспериментальных значений $N = 10^{16}$; $D = 0.3$ мм получим $n_0 \approx 10^{15}$ см $^{-3}$. Другая оценка n_0 , основанная на выражении для плотности вдоль оси сверхзвуковой свободной струи $n_0 = 0.1 n_1 (D/\alpha)^2$ [11] (где $n_1 \approx 10^{20}$ см $^{-3}$ – плотность плазмы в момент τ_1 [4, 10]), также дает $n_0 \approx 10^{15}$ см $^{-3}$. Максимальное увеличение плотности в ударном слое определяется выражением [12] $n = n_0 (\gamma + 1) / (\gamma - 1)$, где γ – показатель адиабаты (для плазмы в условиях эксперимента $\gamma = 1.2 - 1.3$ [4, 13]), или $n \approx 10 n_0 \approx 10^{16}$ см $^{-3}$. Тогда $\lambda = (\sqrt{2} n \sigma)^{-1} \approx 0.2$ мм для газокинетического сечения столкновений $\sigma = 4 \cdot 10^{-15}$ см $^{-3}$ [7]. В потоке за сеткой $\lambda' \approx k \phi \lambda \approx 2$ мм, следовательно, условия $k n = \lambda/d > 1$; $k n' = \lambda'/c \sim 1$ выполняются.

Влияние подложки на состав частиц в факеле показано на рис. 2. Ранее было обнаружено [9, 14, 15], что при лазерном испарении $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ при типичных для напыления пленок режимах облучения в факеле наряду с атомами и оксидами присутствуют кластеры, которые образуются в результате конденсации в расширяющейся плазме и содержат преимущественно иттрий и кислород. Необходимые для конденсации частоты столкновения частиц реализуются при достаточно больших плотностях энергии и размерах пятна облучения мишени (в работах [9, 14, 15] кластеры наблюдались

при $E > 1$ Дж/см² и $D > 0.3$ мм). В случае взаимодействия потока с подложкой частицы претерпевают значительное количество столкновений в приповерхностном слое, что приводит к торможению и термализации частиц и способствует образованию и росту кластеров. На рис. 2 это иллюстрируется на примере „легкого“ (Y_3O_4 , 331 а. е. м.) и „тяжелого“ ($Y_{11}O_{16}$, 1235 а. е. м.) кластеров. Концентрация кластеров (пропорциональная интенсивности пика в масс-спектре) за сеткой значительно выше, чем в невозмущенном потоке; кластерные пики появляются при меньших интенсивностях излучения. Более того, кластеры наблюдаются при таких малых размерах пятна ($D = 0.2$ мм, кривые 2 и 5), когда в невозмущенной плазме плотность мала и кластеры отсутствуют при любых E . Уменьшение концентрации Y_3O_4 при $E > 1.5$ Дж/см² (кривая 1) обусловлено, по-видимому, сдвигом распределения кластеров по размеру в сторону больших размеров.

Введение в поток сетки приводит к увеличению времени прилета частиц (атомов, окислов, кластеров) в точку измерения приблизительно на 10 мкс. При средней скорости нейтралов в набегающем потоке $V \approx 3$ км/с и за сеткой $V' \approx 2$ км/с это соответствует среднему времени пребывания частиц в ударном слое $\tau \approx 5$ мкс. Среднее число столкновений, испытываемых частицей при прохождении слоя до поверхности подложки, равно $V\tau/\lambda \approx 25$ для плотности слоя $5 \cdot 10^{15}$ см⁻³. Найденное значение τ хорошо согласуется с данными [3] для времени существования термализованной области вблизи твердой поверхности, полученными из спектральных измерений при близких параметрах эрозивной плазмы.

Таким образом, в работе предложен метод для определения состава и энергии осаждаемых на подложку частиц и показано, что при лазерном напылении $YBaCuO$ пленок в приповерхностном слое существенно изменяются характеристики падающих частиц и происходит рост кластеров.

С п и с о к л и т е р а т у р ы

- [1] О с а д и н Б.А., Р у с а к о в Н.В. // ЖТФ. 1974. Т. 44. В. 2. С. 477-478.
- [2] Д е м ч е н к о П.А., К р у п н и к Л.И. // ЖТФ. 1976. Т. 46. В. 11. С. 2333-2338.
- [3] А х с а х а л я н А.Д., Б и т о р и н Ю.А., Г а п о н о в С.В., Г у д к о в А.А., Л у ч и н В.И., // ЖТФ. 1982. Т. 52. В. 8. С. 1584-1589.
- [4] S i n g h R.K., N a r a y a n J. // Phys. Rev. B. 1990. V. 41. N 13. P. 8843-8859.
- [5] D u t t a B., W u X.D., I n a m A., V e n k a t e s a n T. // Solid State Technology. 1989. V. 32. N 2. P. 106-110.
- [6] В а р л а м о в Ю.Д., В р а ц к и х В.Ф., П р е д т е ч е н с к и й М.Р., Р ы к о в А.И., Т у р б и н А.В. // Письма в ЖТФ. 1988. Т. 14. В. 2. С. 2068-2070.

- [7] Кошмаров Ю.А., Рыжов Ю.А. Прикладная динамика разреженного газа. М.: Машиностроение. 1977. 184 с.
- [8] Иванов М.А., Козлов Б.Н., Мамырин Б.А., Имикк Д.В., Шебелин В.Г. // ЖТФ. 1983. Т. 53. В. 10. С. 2039-2044.
- [9] Bulgakov A.V., Mayorov A.P., Redtchenksky M.R. et al. // Proc. Beijing Int. Conf. on HTSC. Singapur. 1990. P. 109-111.
- [10] Предтеченский М.Р., Майоров А.П. // СФХТ. 1922 (в печати).
- [11] Richter A. // Thin Solid Films. 1990. V. 188. P. 275-292.
- [12] Хайз У.Д., Пробстин Р.Ф. Теория гиперзвуковых течений. М.: ИЛ, 1962. 352 с.
- [13] Зельдович Я.Б., Райзер Ю.П. Физика ударных волн в высокотемпературных гидродинамических явлений. М.: Наука. 1966. 686 с.
- [14] Вескер С.Н., Раллих J.B. // J. Appl. Phys. 1988. V. 64. N 10. P. 5152-5156.
- [15] Булгаков А.В., Козлов Б.Н., Майоров А.П. и др. // Письма в ЖТФ. 1991. Т. 17. № 21. С. 18-22.

Институт теплофизики
Сибирского отделения
РАН, Новосибирск

Поступило в Редакцию
27 июля 1992 г.