

УДК 539.231

ВЛИЯНИЕ БУФЕРНЫХ ГАЗОВ НА ЭНЕРГЕТИЧЕСКИЙ СПЕКТР ЧАСТИЦ ПЛАЗМЕННОГО ФАКЕЛА ПРИ ЛАЗЕРНОЙ АБЛЯЦИИ ДВУХКОМПОНЕНТНОЙ МИШЕНИ SiMn

© 2024 г. Л. С. Паршина¹, *, Д. С. Гусев¹, О. Д. Храмова¹,
О. А. Новодворский¹, Ф. Н. Путилин²

¹Национальный исследовательский центр «Курчатовский институт»,
Россия, 123182 Москва, пл. Академика Курчатова, 1

²Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова, Химический факультет,
Россия, 119991 Москва, Ленинские горы, 1

*e-mail: parshinaliubov@mail.ru

Поступила в редакцию 25.09.2023 г.

После доработки 13.11.2023 г.

Принята к публикации 14.11.2023 г.

Исследовано влияние давления буферных газов He, Xe, Ar, N₂ на энергетический спектр частиц плазменного факела при абляции двухкомпонентной мишени SiMn лазерным излучением нанометровой длительности. Определены функции распределения заряженных частиц факела по скоростям времяпролетным методом зонда Ленгмюра в зависимости от типа и давления газа от 1·10⁻⁶ до 4·10⁻¹ торр. Рассмотрены механизмы немоного влияния давления газа на амплитуду и задержку сигнала зонда. Установлено, что буферные газы аргон и азот в широком диапазоне давлений незначительно изменяют энергию частиц. При изменении давления аргона от 1·10⁻⁵ до 8·10⁻² торр задержка прихода максимума сигнала изменяется на 20%, что позволяет плавно изменять свойства синтезированных пленок. Установлена зависимость амплитуды сигнала ферромагнитного резонанса пленок Mn_xSi_{1-x} (x ~ 0.5) от давления аргона.

Ключевые слова: импульсное лазерное осаждение, зонд Ленгмюра, времяпролетные кривые, функции распределения ионов по скоростям

DOI: 10.31857/S0002337X24010153, **EDN:** MGPPDE

ВВЕДЕНИЕ

Разработка технологии импульсного лазерного осаждения (ИЛО) тонких пленок металлов, полупроводников и диэлектриков позволяет создавать широкий спектр пленочных структур, как для научных исследований, так и для практических приложений. ИЛО является одним из основных инструментов современных нанотехнологий, расширяющих круг материалов, позволяющих совершенствовать устройства микро- и нанoeлектроники [1]. Это связано с его простотой, безопасностью, а также возможностью контроля свойств пленочных структур в процессе роста. Процесс лазерной абляции мишени является лишь составной частью метода ИЛО. В то же время лазерная абляция

материалов используется при получении не только тонких пленок, но и наночастиц [2]. Важным параметром ИЛО является энергия осаждаемых частиц, которая оказывает существенное влияние на процесс роста пленок и определяет их характеристики (адгезию, морфологию поверхности, магнитные, оптические, электрические и структурные свойства) [3–5].

Энергия частиц факела влияет на неравновесные процессы диффузии, десорбции и нуклеации при осаждении на подложку, изменяя свойства пленок [6]. Разработка эффективного метода управления энергетическим спектром частиц лазерного факела позволит получать пленки с различными структурными характеристиками: от пре-

дельно неупорядоченного и даже аморфного состояния до эпитаксиальных пленок с высоким кристаллическим совершенством.

Известно, что процесс абляции в вакууме сопровождается генерацией ионов с энергией до нескольких десятков эВ [5, 7, 8], и это преимущество метода дает высокую скорость зародышеобразования при росте пленки, позволяя прецизионно регулировать скорость роста при получении тонких, до 1 нм, пленок [9]. Однако частицы с высокой энергией могут приводить к травлению пленки, что может вызывать изменение ее химического состава и генерацию дефектов, поэтому ведется активный поиск контроля и управления энергетическим спектром частиц факела при лазерном синтезе тонких пленок [10–12].

ИЛО представляет собой сложный процесс, в котором существуют корреляции между физическими свойствами мишени (температура плавления, температура испарения, электро- и теплопроводность), характеристиками лазера (длина волны генерации, частота повторения, длительность и энергия импульса, плотность энергии на мишени), видами буферного газа (молекулярным, атомарно-инертным или реактивным), физическими свойствами подложек и геометрией осаждения. Все эти параметры взаимосвязаны, и изменение одного из них влечет изменение оптимальных настроек для других. Из-за тесной взаимосвязи параметров управление процессом осаждения напрямую коррелирует со знанием энергетического спектра частиц плазменного факела и влиянием его свойств на осаждаемую пленку [3, 5, 6].

Чтобы получить представление о любой из этих взаимосвязей, используются хорошо зарекомендовавшие себя времяпролетные методы диагностики плазмы, такие как оптическая эмиссионная спектроскопия [3, 10], лазерно-индуцированная флуоресценция [11], масс-спектрометрия [12], зондовая диагностика [3, 13–17]. Зондовая диагностика факела с применением зонда Ленгмюра является чувствительным методом с высоким пространственным разрешением по направлению разлета [8, 14].

В настоящее время зондовый метод исследования плазменного факела развивается как в экспериментальном, так и в теоретическом направлениях [18, 19]. Зонд Ленгмюра обладает большой универсальностью и используется в различных типах плазмы на основе различных технологий, таких как лазерная плазма, разрядная плазма, плазма магнетронного распыления. Электрический зонд, помещенный в ионизованную лазерную плазму, регистрирует заряженные частицы, что позволяет определить функции распределения по энергии электронов и ионной составляющей факела [10, 14, 15]. Медленная часть зондового сигнала ионов определяется ионами, распространяющимися совместно с нейтральной частью факела, что позволяет определить кинетическую энергию нейтральной компоненты факела [10].

Наиболее важным параметром плазмы факела, влияющим на характеристики пленок, является скорость ионов и нейтральных частиц, осаждаемых на подложку, что задается энергетическим спектром частиц факела [3, 15]. При разлете факела в вакуум энергетический спектр частиц факела определяется плотностью энергии лазерного излучения на мишени [7, 8, 15]. Установлено влияние параметров лазерного факела на структуру, морфологию [15, 20] и магнитные свойства пленок высокотемпературных ферромагнитных полупроводников [21, 22]. Контроль кинетической энергии имеет первостепенное значение для получения высококачественных пленок. Разработанная авторами [23] модель адиабатического расширения облака однокомпонентного пара в вакуум, основанная на уравнениях газовой динамики, обеспечивает достаточно хорошее согласование экспериментальных данных по расширению абляционного факела однокомпонентных мишеней, но она не может адекватно описать расширение плазменного факела многокомпонентных материалов с ярко выраженными столкновениями в факеле и неодинаковыми временами прихода частиц разного сорта на подложку [24]. Разработана гидродинамическая модель для описания динамики абляционной плазмы, расширяющейся в буферном газе [25]. В литературе предложено несколь-

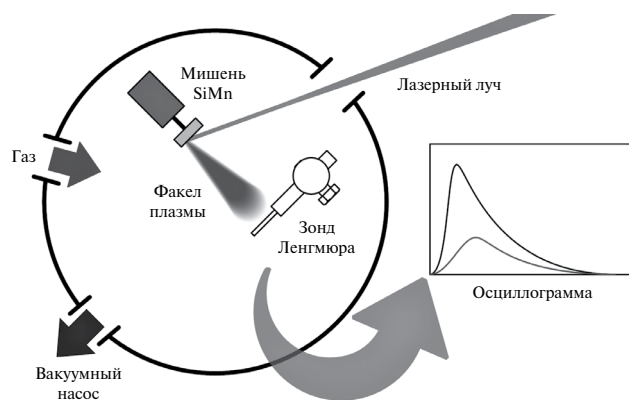


Рис. 1. Схема установки для диагностики плазмы факела времяпролетным методом с применением зонда Ленгмюра.

ко способов управления энергией лазерной плазмы при абляции, включая уменьшение плотности энергии на мишени [26, 27], использование буферного газа [24, 28], внеосевое осаждение [29, 30]. Наличие буферного газа существенным образом влияет на функцию распределения частиц факела по скоростям в реакционных газах [31, 32] и в атмосфере инертных газов [33, 34]. Поэтому буферный газ часто используется не только для включения в пленки, например кислород или азот, но и для снижения кинетической энергии прилетающих на подложку частиц [35–37].

В настоящее время интенсивно исследуется влияние параметров лазерного факела на структуру, морфологию и магнитные свойства тонких пленок высокотемпературных ферромагнитных полупроводников [21], представляющих огромный интерес для спинтроники. Однако невысокая температура Кюри таких материалов накладывает очевидные ограничения на возможность их применения. В связи с этим особого внимания заслуживает полупроводниковый материал SiMn, тонкие пленки которого при небольшом отклонении от стехиометрии сохраняют магнитные свойства при температуре выше комнатной [38, 39] и демонстрируют при этом высокую спиновую поляризацию носителей, проявляющуюся в аномальном эффекте Холла [40]. Исследование динамики плазменного факела, образующегося при абляции мишени SiMn в вакууме, позволило определить оптимальный энергетический состав частиц, формирующих пленку

на подложке [30]. Однако ферромагнитные свойства таких пленок можно улучшить, варьируя тип и давление буферного газа в процессе лазерного осаждения. При создании в вакуумной камере определенного давления буферного газа возможно управление энергией ионов в факеле. Это связано с тем, что в результате столкновения частиц факела с атомами газа происходит потеря энергии частиц [34]. Особенно заметной эта потеря становится тогда, когда длина свободного пробега частиц становится меньше расстояния между мишенью и подложкой. Доля ионов в факеле мала по сравнению с концентрацией нейтральных частиц. Состав пленок в основном формируют нейтральные частицы, а ионы создают центры нуклеации, что также крайне важно. Известно, что нейтральные частицы факела летят медленнее ионов при абляции как однокомпонентных [10], так и многокомпонентных мишеней [41]. Зонд Ленгмюра не взаимодействует с нейтральными частицами. Однако бывают ситуации, когда возбужденные нейтральные частицы факела (A^*), сталкиваясь друг с другом или с атомами буферного газа (B), могут ионизоваться, например, по механизму столкновения второго рода $A^* + B = A + B^+ + e$ [42].

В настоящей работе рассматриваются два основных механизма ионизации частиц буферного газа. Одним из них является механизм столкновения второго рода, а вторым — ионизация в пограничном слое плазменного факела, в формировании которого существенную роль играют электроны [43]. Генерация быстрых ионов в плазме по этому механизму происходит в результате ионизации и ускорения частиц буферного газа в двойном слое, определяющем фронт плазменного факела. Таким образом, для оптимизации процесса лазерного осаждения тонких пленок Si_xMn_{1-x} с высокими магнитными характеристиками важно определить энергетический спектр частиц плазменного факела в зависимости от плотности энергии лазерного излучения на мишени и давления буферного газа [21, 22, 44].

Целью настоящей работы было исследование влияния давления буферных газов He, Xe, Ar или N_2 на энергетический спектр

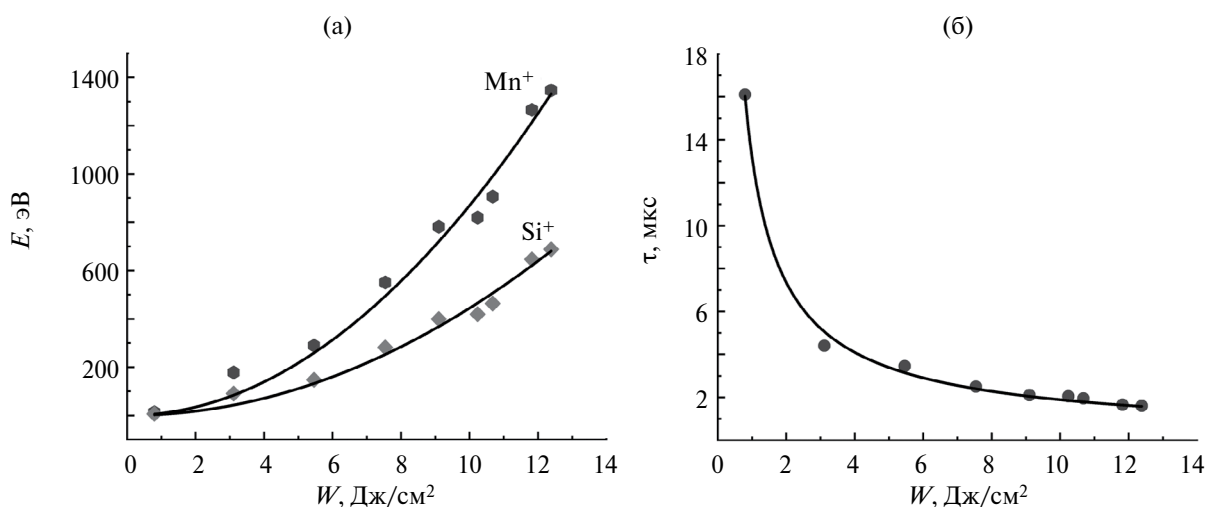


Рис. 2. Зависимости энергии ионов факела E (а) и времени прихода сигнала в максимуме ВПК (б) от плотности энергии на мишени W при абляции мишени SiMn в вакууме.

частиц плазменного факела при абляции двухкомпонентной мишени SiMn лазерным излучением путем измерения функции распределения заряженных частиц факела по скоростям времяпролетным методом зонда Ленгмюра, а также оптимизация диапазона давлений буферного газа различного типа для снижения энергии ионов факела при синтезе тонких пленок $\text{Si}_x\text{Mn}_{1-x}$.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Для диагностики плазмы факела использовался времяпролетный метод с применением зонда Ленгмюра. Для этого на пути разлета факела в вакуумной камере на расстоянии 6 см от мишени помещался зонд Ленгмюра, представляющий собой вольфрамовую проволоку длиной 5 и диаметром 0.5 мм, который находился под отрицательным потенциалом и располагался перпендикулярно направлению оси разлета факела. Измерялись зависимость тока через зонд от времени, а также время задержки между лазерным импульсом и фронтом сигнала. Экспериментальная установка для исследования динамики лазерной плазмы в атмосфере буферного газа представлена на рис. 1. Она включает в себя вакуумную камеру с расположенными в ней мишенью SiMn и зондом Ленгмюра, систему прецизионного напуска газа, измерительную схему и систему откачки. Сигналы зонда регистрировались аналого-цифровым преобразователем и осцилло-

графом. Абляция мишени осуществлялась излучением второй гармоники Nd:YAG-лазера ($\lambda = 532$ нм) с модуляцией добротности, которое заводилось в вакуумную камеру через окно. Получены серии времяпролетных кривых в атмосфере He, N_2 , Ar и Xe в диапазоне давлений от $1 \cdot 10^{-6}$ до $1 \cdot 10^{-1}$ торр для плотностей энергии на мишени от 1 до 12.4 $\text{Дж}/\text{см}^2$. Для запуска системы регистрации использовался синхроимпульс от фотодиода ФД-24К. При построении графиков времяпролетных кривых (ВПК) сигналы зонда нормировались на энергию соответствующего лазерного импульса по максимуму сигнала фотодиода.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

При абляции мишеней в вакууме при давлении в камере 10^{-6} торр из зондовых ВПК были определены энергии частиц факела и время прихода сигнала в точке максимума ВПК при различных значениях плотности энергии на мишени W . Результаты представлены на рис. 2. Зависимости энергии ионов факела от плотности энергии на мишени $E(W)$ были аппроксимированы кривыми $y = cx^2$. Потенциалы однократной ионизации для использованных нами буферных газов He (24.58 эВ), N_2 (14.54 эВ), Ar (15.75 эВ), Xe (12.13 эВ) значительно ниже значений энергии ионов Si^+ и Mn^+ в факеле при разлете в вакууме (рис. 2). Это показывает, что кинетическая энергия ионов факела во всем

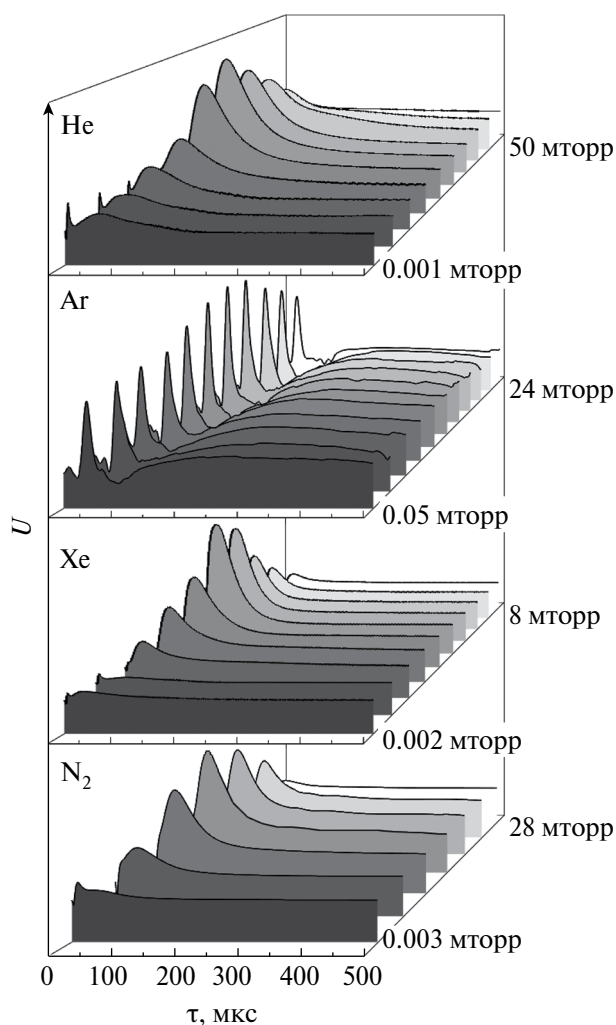


Рис. 3. ВПК зондового сигнала в атмосфере He, Ar, Xe и N_2 при плотности энергии на мишени 10 Дж/см^2 и различных давлениях буферного газа в напылительной камере.

диапазоне используемой плотности энергии на мишени от 1 до 12.4 Дж/см^2 при абляции превышает энергию ионизации исследованных инертных газов и молекул N_2 и они могут быть ионизованы различными механизмами: ионами факела при столкновениях [30], по механизму столкновения второго рода $A^* + B = A + B^+ + e$ [42], в результате ионизации и ускорения частиц буферного газа в двойном слое на фронте плазменного факела [43].

На рис. 3 приведены ВПК ионной составляющей факела SiMn для некоторых значений давления He, Ar, Xe и N_2 в камере при плотности энергии лазерного излучения на мишени 10 Дж/см^2 .

Зависимости амплитуды зондовой ВПК, а также задержки между импульсом абляции мишени и началом сигнала на ВПК от давления He, Ar, Xe и N_2 в камере представлены на рис. 4. Из графика зависимости амплитуды ВПК зондового сигнала от давления гелия (рис. 4а) видно, что в диапазоне изменения давления от 10^{-6} до 10^{-4} торр амплитуда сигнала практически не меняется, что указывает на баллистический (бесстолкновительный) режим разлета факела. Далее, при увеличении давления вплоть до давления 10^{-2} торр, амплитуда сигнала растет, а затем при давлении выше 2×10^{-2} торр начинает падать по логарифмической зависимости от давления. При давлении 10^{-1} торр сигнал падает до уровня шумов. Немонотонное изменение сигнала при увеличении давления можно объяснить увеличением числа ионов, возникающих в объеме камеры и достигающих зонда. Такое может произойти только вследствие ионизации молекул буферного газа в результате столкновений с ионами факела высокой энергии [34], генерируемыми в процессе абляции мишени, а также в результате ионизации в области двойного слоя [43]. При достижении давления 10^{-4} торр длина свободного пробега ионов становится меньше расстояния до зонда и число столкновений резко возрастает. Так как энергия некоторой части ионов в плазме факела превышает потенциал ионизации гелия, одновременно с ростом числа столкновений и в результате ионизации в области двойного слоя растет и число ионов, достигающих зонда. При дальнейшем повышении давления преобладает механизм рассеяния ионов на молекулах газа, что приводит к снижению амплитуды зондового сигнала до нуля. Аналогичный бесстолкновительный режим разлета факела при давлении до 10^{-4} торр наблюдается в атмосферах аргона и ксенона. Для азота такой режим разлета факела сохраняется до более высокого, чем в других газах, давления в диапазоне от 10^{-6} до 2×10^{-4} торр.

На ВПК зондового сигнала в атмосфере Ar в отличие от ВПК в атмосфере He наблюдается довольно интенсивный сигнал медленно летящих ионов (рис. 3). При этом пик ионов с высокой энергией четко отделен от растянутого пика медленных ионов. ВПК в

Таблица 1. Газокинетические параметры молекул буферных газов He, Ar, Xe, N₂, энергия ионизации, задержка сигнала и давление в максимуме ВПК для этих буферных газов

Молекула	d , 10^{-8} см	M , а.е.м.	Энергия ионизации, эВ	Задержка в максимуме, мкс	Давление в максимуме, торр
He	2.15	4.0	24.58	50	$2 \cdot 10^{-2}$
Ar	3.58	39.9	15.75	36	$2 \cdot 10^{-2}$
Xe	4.36	131.3	12.13	31	$(3-4) \cdot 10^{-3}$
N ₂	3.70	28.0	14.54	34	$(6-8) \cdot 10^{-3}$

Примечание. d и M – диаметр и масса молекул газов.

других использованных нами буферных газах (в гелии, ксеноне, азоте) плавно спадают во времени. Обращает на себя внимание наличие отрицательных выбросов на графиках ВПК в начале развертки в атмосфере всех буферных газов. Это связано с наличием в факеле электронов, энергия которых превышает потенциал зонда [45]. При осаждении на зонд они дают отрицательный всплеск тока. Непосредственно за отрицательным выбросом наблюдается короткий положительный импульс, который можно связать с выбиванием вторичных электронов с поверхности зонда [46]. Снижение амплитуды пика в начале развертки с ростом давления He и других буферных газов вызвано снижением температуры электронного газа с увеличением давления буферного газа. В то же время максимальная амплитуда ВПК зондового сигнала немонотонно зависит от давления буферного газа. Зависимости задержки между импульсом абляции мишени и началом импульса времяпролетного сигнала от давления буферного газа в камере для разных газов различаются (рис. 4б). Обращает на себя внимание, что задержка сигнала зонда не зависит от давления гелия вплоть до 10^{-2} торр, после которого амплитуда зондовой ВПК начинает резко падать (рис. 4а), а задержка увеличивается почти на порядок. В то же время с увеличением давления от 10^{-4} до 10^{-2} торр амплитуда сигнала растет, а задержка его прихода на зонд остается неизменной. Это говорит о том, что при столкновениях ионов факела с атомами гелия последние не только ионизируются (амплитуда сигнала растет с ростом давления), но и приобретают скорость, равную скорости ионов факела (квазинеупругий удар). Аналогичная зависимость наблюдает-

ся и для аргона. Вплоть до давления аргона 2×10^{-2} торр задержка сигнала зонда слабо от него зависит, а при дальнейшем увеличении давления начинает возрастать (рис. 4б). В отличие от He и Ar для Xe задержка не зависит от давления до 10^{-4} торр, в диапазоне от 10^{-4} до 1×10^{-2} торр логарифмически растет при увеличении давления (линейная зависимость) и экспоненциально растет при дальнейшем его увеличении. Как и в случае гелия, до 10^{-4} торр амплитуда сигнала зондовой ВПК от давления N₂ в камере не меняется (рис. 4а). При дальнейшем увеличении давления амплитуда сигнала растет, достигая максимума при $\sim 8 \times 10^{-3}$ торр. Затем амплитуда сигнала резко падает до 2×10^{-2} торр и потом медленно снижается. Зависимость задержки между лазерным импульсом абляции мишени и началом импульса зондового сигнала от давления в случае азота начинает проявляться только при давлении порядка 10^{-1} торр (рис. 4б). Здесь наблюдается слабый рост величины задержки до давления $\sim 2 \times 10^{-4}$ торр, после чего начинается резкий рост. В отличие от задержек в атмосфере благородных газов задержка прихода максимума сигнала в азоте демонстрирует немонотонную зависимость от давления. В диапазоне давлений от 10^{-2} до 10^{-1} торр наблюдается провал со снижением задержки от 15 до 7 мкс, что характерно для бесстолкновительного режима в диапазоне давлений ниже 2×10^{-4} торр. Это объясняется резонансной по массе эффективностью рассеяния кремния в азоте, а также различным сечением рассеяния и, как следствие, разделением рассеяния кремния и марганца по участкам давления. Интервал давлений от 2×10^{-4} до $\sim 3 \times 10^{-2}$ торр определяет интенсивное угловое рассеяние ионов кремния (их меньше

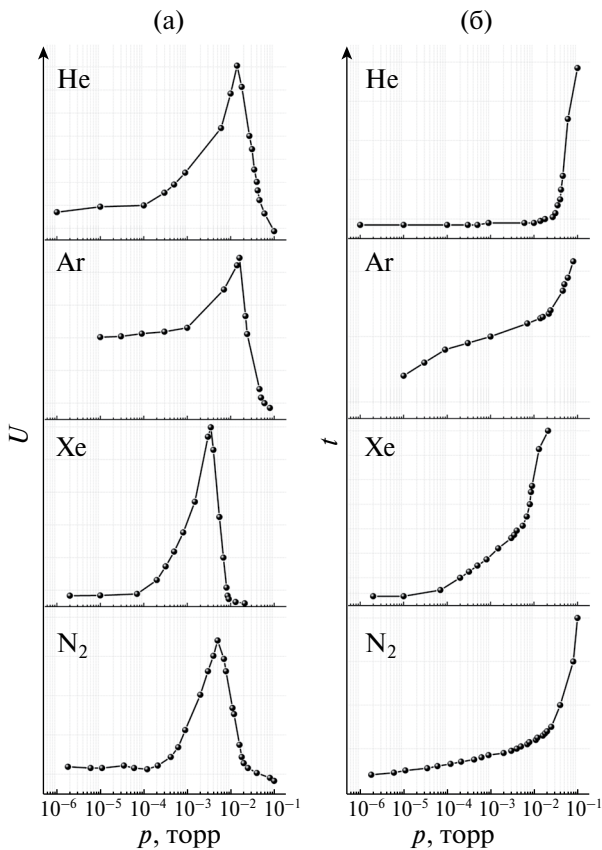


Рис. 4. Зависимости амплитуды зондовой ВПК (а) и задержки между импульсом абляции мишени и началом сигнала на ВПК (б) от давления He, Ar, Xe и N₂.

попадает на зонд), а рассеяние ионов марганца происходит в интервале от $\sim 3 \times 10^{-2}$ до $\sim 2 \times 10^{-1}$ торр. По мере снижения концентрации кремния в центральной части факела и обогащения ее ионами марганца величина задержки уменьшается. Длина свободного пробега ионов марганца больше, поэтому рассеяние ионов марганца начинается при давлении $\sim 8 \times 10^{-2}$ торр и растет вплоть до 4×10^{-1} торр.

Эффективность ионизации зависит от давления буферного газа и сечения ионизации. Более высокое давление в максимуме ВПК указывает на большую длину свободного пробега в данном буферном газе. Из рис. 4а видно, что наименьшее давление в максимуме ВПК у ксенона, а максимальное — у гелия и аргона. Это коррелирует с массой и величиной диаметра молекул буферного газа (табл. 1). В литературе имеются экспериментальные исследования, в которых об-

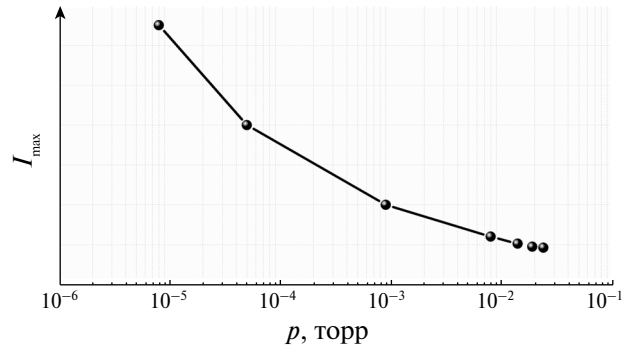


Рис. 5. Амплитуда ферромагнитного резонанса при комнатной температуре для пленок Si_{1-x}Mn_x ($x \sim 0.5$), полученных при различных давлениях аргона.

наружена корреляция между составом и динамикой плазмы и свойствами облучаемых мишеней. Выявлена четкая зависимость некоторых параметров плазмы от температуры плавления, атомной массы или электропроводности материала [28, 47–52]. Сопоставлена температура ядра плазмы с температурой плавления и атомной массой мишеней и проведены другие корреляции между свойствами мишени и характеристиками плазмы факела [34].

Мы наблюдали корреляцию между энергией ионизации частиц буферного газа и кинетической энергией частиц, попадающих на зонд, по задержке прихода максимума сигнала. Чем выше потенциал ионизации, тем больше задержка прихода максимума (табл. 1). Это указывает на то, что ионы факела теряют часть кинетической энергии на ионизацию буферного газа, а время прихода максимума ВПК определяет остаток кинетической энергии. При этом, как отмечалось выше, скорость частиц после столкновения и ионизации остается одинаковой и для ионов факела, и для ионов частиц буферного газа.

Таким образом, изменяя давление буферного газа в камере можно плавно менять скорость, а следовательно, энергию частиц факела и свойства получаемых пленок. Наиболее плавно позволяют менять энергию частиц буферные газы аргон и азот. Однако молекулы азота могут реагировать с частицами Si и Mn в возбужденном или ионизированном состоянии и проникать в растущую пленку. По этой причине мы не использовали азот при росте пленок.

В качестве примера влияния давления буферного газа на ферромагнитные свойства тонких пленок $\text{Si}_{1-x}\text{Mn}_x$ получена серия пленок в диапазоне давлений аргона от 8×10^{-6} до 2.4×10^{-2} торр при плотности энергии на мишени 10 Дж/см^2 на подложках *c*-сапфира. На рис. 5 показана зависимость максимумов амплитуд линий ферромагнитного резонанса от давления аргона. Наиболее интенсивный пик поглощения демонстрирует образец, полученный при давлении аргона 8×10^{-6} торр. С ростом давления амплитуда сигнала ферромагнитного резонанса снижается. Мы предполагаем, что увеличение давления буферного газа в напылительной камере уменьшает энергию осаждаемых частиц, что в свою очередь сказывается на ферромагнитных свойствах тонких пленок $\text{Si}_{1-x}\text{Mn}_x$ и на величине ферромагнитного резонанса. Ранее мы исследовали зависимость ферромагнитных свойств тонких пленок $\text{Si}_{1-x}\text{Mn}_x$ от плотности энергии на мишени в вакууме [21, 22]. Полученные здесь результаты подтверждают предыдущие: при снижении энергии частиц факела в результате повышения давления буферного газа ферромагнетизм тонких пленок $\text{Si}_{1-x}\text{Mn}_x$ уменьшается.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Получены ВПК зондового сигнала при абляции мишени SiMn , синтезированной в условиях вакуума. Проведены исследования динамики лазерного факела в разных газах (He , Xe , Ar , N_2) и в широком диапазоне давлений (от 10^{-6} до 4×10^{-1} торр). Существуют как минимум два механизма ионизации частиц буферного газа: ионизация при столкновениях с ионами факела и ионизация в двойном слое на фронте плазменного факела. Определен диапазон давлений буферного газа, при котором происходит эффективная ионизация частиц в двойном слое на фронте плазменного факела. В таком случае с ростом давления амплитуда сигнала увеличивается, а задержка сигнала постоянна. При увеличении давления возрастает и количество столкновений частиц буферного газа с ионами факела. Энергия некоторой части ионов в плазме факела превышает потен-

циал ионизации частиц буферного газа, поэтому с ростом давления растет и число ионов, достигающих зонда, при этом растут амплитуда и задержка прихода зондового сигнала. При повышении давления буферного газа длина свободного пробега уменьшается и преобладает механизм рассеяния ионов на молекулах газа, что приводит к спаду амплитуды зондового сигнала до нуля. С увеличением давления буферного газа в камере положение пика зондового сигнала сдвигается в область меньших энергий, что позволяет управлять энергетическим спектром осаждаемых частиц.

Полученные результаты говорят о том, что, варьируя давление буферного газа в камере, можно плавно изменять энергию частиц факела. Наиболее ярко это проявляется в случае азота и аргона. Так, изменение давления аргона почти на четыре порядка изменяет задержку прихода максимума сигнала с 7 до 8.5 мкс. Величина задержки однозначно связана со средним значением энергии частиц факела, а характер зависимостей задержки и амплитуды зондового сигнала от давления буферного газа говорит о том, что на процесс осаждения влияют как давление, так и вид инертного газа. Подбор оптимального значения энергии ионов в факеле позволяет выбрать необходимые условия осаждения пленок.

Полученные в работе результаты подтверждают возможность плавного управления энергией частиц в процессе ИЛО за счет напуска в вакуумную камеру буферного газа необходимого давления, что крайне важно для синтеза тонких пленок с нужными свойствами и с контролируемой скоростью роста. Установлена зависимость ферромагнитных свойств пленок $\text{Mn}_x\text{Si}_{1-x}$ ($x \sim 0.5$) от давления аргона.

ФИНАНСИРОВАНИЕ РАБОТЫ

Работа проведена в рамках государственного задания НИЦ «Курчатовский институт».

КОНФЛИКТ ИНТЕРЕСОВ

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Lowndes D., Geohegan D., Poretzky A., Norton D., Rouleau C.* Synthesis of Novel Thin-Film Materials by Pulsed Laser Deposition // *Science*. 1996. V. 273. P. 898–903.
<http://www.jstor.org/stable/2891510>
2. *Максимов Р.Н., Платонов В.В., Осипов В.В., Карагедов Г.Р., Юровских А.С., Спирина А.В., Шитов В.А.* Свойства наночастиц оксида тербия, синтезированных методом лазерной абляции в восстановительной среде // *Неорг. материалы*. 2023. Т. 59. № 2. С. 176–184.
<https://doi.org/10.31857/S0002337X23020112>
3. *Kwok H.S., Kim H.S., Kim D.H., Shen W.P., Sun X.W., Xiao R.F.* Correlation between Plasma Dynamics and Thin Film Properties in Pulsed Laser Deposition // *Appl. Surf. Sci.* 1997. V. 109–110. P. 595–600.
[https://doi.org/10.1016/S0169-4332\(96\)00640-X](https://doi.org/10.1016/S0169-4332(96)00640-X)
4. *Roy R.A., Catania P., Saenger K.L., Cuomo J.J., Rossy R.L.* Role of Energetic Atoms and Ions in Ta Films Grown by Different Physical Vapor Deposition Methods // *J. Vac. Sci. Technol. B*. 1993. V. 11. № 5. P. 1921–1927.
<https://doi.org/10.1116/1.586523>
5. *Новодворский О.А., Паршина Л.С., Храмова О.Д., Михалевский В.А., Щербачев К.Д., Панченко В.Я.* Влияние условий импульсного лазерного осаждения на структурные, электрические и оптические свойства тонких пленок VO₂ // *ФТП*. 2015. Т. 49. № 5. С. 577–583.
<https://doi.org/10.1134/S1063782615050188>
6. *Fluri A., Pergolesi D., Roddatis V., Wokaun A., Lippert T.* In Situ Stress Observation in Oxide Films and How Tensile Stress Influences Oxygen Ion Conduction // *Nat. Commun.* 2016. V. 7. P. 10692.
<https://doi.org/10.1038/ncomms10692>
7. *Lunney J.G., Jordan R.* Pulsed Laser Ablation of Metals // *Appl. Surf. Sci.* 1998. V. 127–129. P. 941–946.
[https://doi.org/10.1016/S0169-4332\(97\)00770-8](https://doi.org/10.1016/S0169-4332(97)00770-8)
8. *Novodvorsky O.A., Khramova O.D., Filippova E.O., Wenzel C., Bartha J.W.* Energy Distribution of Ions in Plasma Formed by Laser Ablation of Metallic Nb and Ta Targets // *Opt. Lasers Eng.* 2000. V. 32. P. 449–457.
[https://doi.org/10.1016/S0143-8166\(00\)00013-0](https://doi.org/10.1016/S0143-8166(00)00013-0)
9. *Canulescu S., Dobeli M., Yao X., Lippert T., Amoroso S., Schou J.* Nonstoichiometric Transfer During Laser Ablation of Metal Alloys // *Phys. Rev. Mater.* 2017. V. 1. P. 73402.
<https://doi.org/10.1103/PhysRevMaterials.1.073402>
10. *Новодворский О.А., Храмова О.Д., Филиппова Е.О., Сагдеев Р.Я., Шевелев А.К., Барта И.В., Венцель К.* Исследование характеристик лазерного факела по эмиссионным спектрам при лазерной абляции металлических мишеней из ниобия и тантала в вакууме // *Изв. АН. Сер. физ.* 2002. Т. 66. № 6. С. 935–938.
11. *Буримов В.Н., Жерихин А.Н., Попков В.Л.* Скоростное распределение ионов Ва⁺ в плазме, возникающей при лазерной абляции высокотемпературной сверхпроводящей мишени // *Квантовая электроника*. 1995. Т. 22. № 11. С. 1096–1098.
<https://doi.org/10.1070/QE1995v025n11ABEH000533>
12. *Старинский С.В., Шухов Ю.Г., Булгаков А.В.* Динамика импульсной лазерной абляции золота в вакууме в режимах синтеза наноструктурных пленок // *Письма в ЖТФ*. 2016. Т. 42. № 8. С. 45–52.
<https://doi.org/10.1134/S1063785016040258>
13. *Dyer P.E., Greenough R.D., Issa A., Key P.H.* Spectroscopic and Ion Probe Measurements of KrF Laser Ablated Y-Ba-Ci-O Bulk Samples // *Appl. Phys. Lett.* 1988. V. 53. № 6. P. 534–536.
<https://doi.org/10.1063/1.100628>
14. *Novodvorsky O.A., Khramova O.D., Wenzel C., Bartha J.W., Filippova E.O.* Characterization of Erosion Plume after Ablation of Copper and Tantalum Targets by Excimer Laser Irradiation // *J. Appl. Phys.* 2003. V. 94. № 5. P. 3612–3625.
<https://doi.org/10.1063/1.1594274>
15. *Ramana C.V., Smith R.J., Hussain O.M., Julien C.M.* On the Growth Mechanism of Pulsed-Laser Deposited Vanadium Oxide Thin Films // *Mater. Sci. Eng. B*. 2004. V. 111. P. 218–225.
<https://doi.org/10.1016/j.mseb.2004.04.017>
16. *Giuffredi G., Mezzetti A., Perego A., Mazzolini P., Prato M., Fumagalli F., Lin Y., Liu C., Ivanov I.N., Belianinov A., Colombo M., Divitini G., Ducati C., Duscher G., Poretzky A.A., Geohegan D.B., Fonzo F.D.* Non-Equilibrium Synthesis of Highly Active Nanostructured, Oxygen-Incorporated Amorphous Molybdenum Sulfide HER

- Electrocatalyst // *Small*. 2020. V. 16. № 44. P. 2004047.
<https://doi.org/10.1002/smll.202004047>
17. Wang R., Sun P., Wang H., Wang X. Pulsed Laser Deposition of Amorphous Molybdenum Disulfide Films for Efficient Hydrogen Evolution Reaction // *Electrochim. Acta*. 2017. V. 258. P. 876–882.
<https://doi.org/10.1016/j.electacta.2017.11.138>
 18. Hsieh Y.L., Kau L.H., Huang H.J., Lee C.C., Fuh Y.K., Li T.T. In Situ Plasma Monitoring of PECVD nc-Si:H Films and the Influence of Dilution Ratio on Structural Evolution // *Coatings*. 2018. V. 8. № 7. P. 238.
<https://doi.org/10.3390/coatings8070238>
 19. Donnelly T., Lunney J.G., Amoroso S., Bruzzese R., Wang X., Ni X. Dynamics of the Plumes Produced by Ultrafast Laser Ablation of Metals // *J. Appl. Phys.* 2010. V. 108. P. 043309.
<https://doi.org/10.1063/1.3475149>
- Паршина Л.С., Храмова О.Д., Новодворский О.А., Петухов И.А., Путилин Ф.Н., Румянцева М.Н., Лотин А.А., Щербачев К.Д., Панченко В.Я. Влияние энергии факела на характеристики пленок $\text{SnO}_2\text{:Sb}$ при использовании бескапельного метода ИЛО // *Вычислительные нанотехнологии*. 2014. Т. 1. С. 62–67.
20. Novodvorsky O.A., Parshina L.S., Khranova O.D., Gusev D.S., Drovosekov A.B., Barkalova A.S., Mikhalevsky V.A., Cherebilo E.A., Rylkov V.V. Laser Synthesis of Thin $\text{Mn}_x\text{Si}_{1-x}$ Films ($x \sim 0.5$) on c- and r- Al_2O_3 Substrates at Different Laser Energy Densities at the Target // *Chaos Solit. Fractals*. 2021. V. 142. P. 110457.
<https://doi.org/10.1016/j.chaos.2020.110457>
 21. Паршина Л.С., Дровосекоев А.Б., Новодворский О.А., Храмова О.Д., Гусев Д.С., Чербыло Е.А., Баркалова А.С., Черноглазов К.Ю., Веденеев А.С., Рыльков В.В. Эволюция ферромагнетизма пленок $\text{Mn}_x\text{Si}_{1-x}$ ($x \approx 0.5$), полученных лазерным синтезом на подложках сапфира c- и r- срезов, при изменении плотности энергии лазерного излучения на мишени // *ЖЭТФ*. 2020. Т. 158. № 4. С. 706–713.
<https://doi.org/10.31857/S0044451020100132>
 22. Anisimov S.I., Luk'yanchuk B.S., Luches A. Three-dimensional Laser Plume Expansion into Vacuum in Hydrodynamic Regime // *Appl. Surf. Sci.* 1996. V. 96–98. P. 24–32.
[https://doi.org/10.1016/0169-4332\(95\)00373-8](https://doi.org/10.1016/0169-4332(95)00373-8)
 23. Ojeda-G-P A., Schneider C.W., Döbeli M., Lippert T., Wokaun A. Plasma Plume Dynamics, Rebound, and Recoating of the Ablation Target in Pulsed Laser Deposition // *J. Appl. Phys.* 2017. V. 121. P. 135306.
<https://doi.org/10.1063/1.4979780>
 24. Thestrup B., Toftmann B., Schou J., Doggett B., Lunney J. Ion Dynamics in Laser Ablation Plumes from Selected Metals at 355 nm // *Appl. Surf. Sci.* 2002. V. 197–198. P. 175–180.
[https://doi.org/10.1016/S0169-4332\(02\)00321-5](https://doi.org/10.1016/S0169-4332(02)00321-5)
 25. Pan S., Li Q., Xian Z., Su N., Zeng F. The Effects of Laser Parameters and the Ablation Mechanism in Laser Ablation of C/SiC Composite // *Materials*. 2019. V. 12. P. 3076.
<https://doi.org/10.3390/ma12193076>
 26. Rodríguez-Hernández P.E., Quiñones-Galván J.G., Meléndez-Lira M., Santos-Cruz J., Contreras-Puente G.G., de Muere Flores F. Effect of Laser Fluence on Structural and Optical Properties of Cu_xS Films Grown by Pulsed Laser Deposition at Different Wavelengths // *Mater. Res. Express*. 2020. V. 7. P. 015908.
<https://doi.org/10.1088/2053-1591/ab663d>
 27. Irimiciuc S.A., Hodoroaba B.C., Bulai G., Gurlui S., Craciun V. Multiple Structure Formation and Molecule Dynamics in Transient Plasmas Generated by Laser Ablation of Graphite // *Spectrochim. Acta, Part B*. 2020. V. 165. P. 105774.
<https://doi.org/10.1016/j.sab.2020.105774>
 28. Fominski V., Demin M., Fominski D., Romanov R., Goikhman A., Maksimova K. Comparative Study of the Structure, Composition, and Electroanalytic Performance of Hydrogen Evolution in $\text{MoS}_{x-2+\delta}/\text{Mo}$ and $\text{MoS}_{x-3+\delta}$ Films Obtained by Pulsed Laser Deposition // *Nanomaterials*. 2020. V. 10. № 2. P. 201.
<https://doi.org/10.3390/nano10020201>
 29. Nikolaev S.N., Semisalova A.S., Rylkov V.V., Tugushev V.V., Zenkevich A.V., Vasiliev A.L., Pashaev E.M., Chernoglazov K.Yu., Chesnokov Yu.M., Likhachev I.A., Perov N.S., Matveyev Yu.A., Novodvorskiy O.A., Kulatov E.T., Bugaev A.S., Wang Y., Zhou S. Ferromagnetism of $\text{Mn}_x\text{Si}_{1-x}$ ($x \sim 0.5$) Films Grown in the Shadow Geometry by Pulsed

- Laser Deposition Method // AIP Adv. 2016. V. 6. P. 015020.
<https://doi.org/10.1063/1.4941357>
30. *Dyer P.E., Issa A., Key P.H.* Dynamics of Excimer Laser Ablation of Superconductors in an Oxygen Environment // Appl. Phys. Lett. 1990. V. 57. № 2. P. 186–188.
<https://doi.org/10.1063/1.103979>
 31. *Shin Y.J., Wang L., Kim Y., Nahm H.H., Lee D., Kim J.R., Yang S.M., Yoon J.G., Chung J.S., Kim M., Chang S.H., Noh T.W.* Oxygen Partial Pressure during Pulsed Laser Deposition: Deterministic Role on Thermodynamic Stability of Atomic Termination Sequence at SrRuO₃/BaTiO₃ Interface // ACS Appl. Mater. Interfaces. 2017. V. 9. P. 27305–27312.
<https://doi.org/10.1021/acsmi.7b07813>
 32. *Novodvorsky O.A., Mikhalevskii V.A., Gusev D.S., Lotin A.A., Parshina L.S., Khramova O.D., Cherebylo E.A.* Time-of-Flight Characteristics of a Laser Torch during Ablation of a MnSi Target in Argon Atmosphere // Tech. Phys. Lett. 2018. V. 44. № 3. P. 271–274.
<https://doi.org/10.21883/PJTF.2018.06.45773.17054>
 33. *Irimiciuc S.A., Chertopalov S., Novotný M., Craciun V., Lancok J.* On the Dynamics of Transient Plasmas Generated by Nanosecond Laser Ablation of Several Metals // Materials. 2021. V. 14. P. 7336.
<https://doi.org/10.3390/ma14237336>
 34. *Schou J.* Physical Aspects of the Pulsed Laser Deposition Technique: The Stoichiometric Transfer of Material from Target to Film // Appl. Surf. Sci. 2009. V. 255. P. 5191–5198.
<https://doi.org/10.1016/j.apsusc.2008.10.101>
 35. *You L., Chua N.T., Yao K., Chen L., Wang J.* Influence of Oxygen Pressure on the Ferroelectric Properties of Epitaxial BiFeO₃ Thin Films by Pulsed Laser Deposition // Phys. Rev. B. 2009. V. 80. P. 024105.
<https://doi.org/10.1103/PhysRevB.80.024105>
 36. *Horwitz J.S., Grabowski K.S., Chrisey D.B., Leuchtner R.E.* In Situ Deposition of Epitaxial PbZr_xTi_(1-x)O₃ Thin Films by Pulsed Laser Deposition // Appl. Phys. Lett. 1991. V. 59. P. 1565–1567.
<https://doi.org/10.1063/1.106284>
 37. *Рыльков В.В., Николаев С.Н., Черноглазов К.Ю., Аронзон Б.А., Маслаков К.И., Тугушев В.В., Кулатов Э., Лихачев И.А., Пашаев Э.М., Семисалова А.С., Перов Н.С., Грановский А.Б., Новодворский О.А., Храмова О.Д., Хайдуков Е.В., Панченко В.Я.* Высокотемпературный ферромагнетизм нестехиометрических сплавов Si_{1-x}Mn_x (x ≈ 0.5) // Письма в ЖЭТФ. 2012. Т. 96. № 4. С. 272–280.
<https://doi.org/10.1134/S0021364012160114>
 38. *Rylkov V.V., Gan'shina E.A., Novodvorskii O.A., Nikolaev S.N., Novikov A.I., Kulatov E.T., Tugushev V.V., Granovskii A.B., Panchenko V.Ya.* Defect-Induced High-Temperature Ferromagnetism in Si_{1-x}Mn_x (x = 0.52–0.55) Alloys // Europhys. Lett. 2013. V. 103. № 5. P. 57014.
<https://doi.org/10.1209/0295-5075/103/57014>
 39. *Chernoglazov K.Yu., Nikolaev S.N., Rylkov V.V., Semisalova A.S., Zenkevich A.V., Tugushev V.V., Vasil'ev A.L., Chesnokov Yu.M., Pashaev E.M., Matveev Yu.A., Granovskii A.B., Novodvorskii O.A., Vedenev A.S., Bugaev A.S., Drachenko O., Zhou S.* Anomalous Hall Effect in Polycrystalline Mn_xSi_{1-x} (x ≈ 0.5) Films with the Self-Organized Distribution of Crystallites over Their Shapes and Sizes // JETP Lett. 2016. V. 103. P. 476–483.
<https://doi.org/10.1134/S0021364016070055>
 40. *Канулеску С., Пападопулу Э.Л., Англос Д., Лунперт Т., Шнайдер К.В., Вокаун А.* Механизмы расширения лазерного факела при абляции LiMn₂O₄ // Журн. прикл. физики. 2009. Т. 105. № 6. С. 063107.
<https://doi.org/10.1063/1.3095687>
 41. *Смирнов Б.М.* Введение в физику плазмы. М.: Наука, 1982. 224 с.
 42. *Морозов А.И.* Введение в плазмодинамику. М.: ФИЗМАТЛИТ, 2008. 616 с.
 43. *Doggett B., Lunney J.G.* Langmuir Probe Characterization of Laser Ablation Plasmas // J. Appl. Phys. 2009. V. 105. P. 033306.
<https://doi.org/10.1063/1.3056131>
 44. *Novodvorsky O.A., Wenzel C., Bartha J.W., Khramova O.D., Filippova E.O.* The Electron Temperature Distribution of Laser Erosion Plume after Ablation of a Tantalum Target with Excimer Laser in Vacuum // Opt. Lasers Eng. 2001. V. 36. № 3. P. 303–311.
[https://doi.org/10.1016/S0143-8166\(01\)00043-4](https://doi.org/10.1016/S0143-8166(01)00043-4)
 45. *Демидов В.И., Колоколов Н.Б., Кудрявцев А.А.* Зондовые методы исследования низкотем-

- пературной плазмы. М.: Энергоатомиздат, 1996. 235 с.
46. *Anoop K.K., Harilal S.S., Philip R., Bruzzese R., Amoroso S.* Laser Fluence Dependence on Emission Dynamics of Ultrafast Laser Induced Copper Plasma // *J. Appl. Phys.* 2016. V. 120. P. 185901.
<https://doi.org/10.1063/1.4967313>
47. *Ni K., Anoop K.K., Bianco M., Amoroso S., Wang X., Li T., Hu M., Song Z.* Ion Dynamics in Ultrafast Laser Ablation of Copper Target // *Chin. Opt. Lett.* 2013. V. 11. P. 093201.
<https://doi.org/10.3788/COL201311.093201>
48. *Irimiciuc S.A., Gurlui S., Bulai G., Nica P., Agop M., Focsa C.* Langmuir Probe Investigation of Transient Plasmas Generated by Femtosecond Laser Ablation of Several Metals: Influence of the Target Physical Properties on the Plume Dynamics // *Appl. Surf. Sci.* 2017. V. 417. P. 108–118.
<https://doi.org/10.1016/j.apsusc.2017.03.055>
49. *Irimiciuc S.A., Chertopalov S., Lancok J., Craciun V.* Langmuir Probe Technique for Plasma Characterization During Pulsed Laser Deposition Process // *Coatings.* 2021. V. 11. P. 762.
<https://doi.org/10.3390/coatings11070762>
50. *Irimiciuc S.A., Novonty M., Fitl P., Bulir J., More-Chevalier J., Fekete L., Hruska P., Chertopalov S., Vrnata M., Lancok J.* In Situ Monitoring of Electrical Resistivity and Plasma during Pulsed Laser Deposition Growth of Ultra-Thin Silver Films // *J. Appl. Phys.* 2021. V. 130. P. 085301.
<https://doi.org/10.1063/5.0057317>
51. *Irimiciuc S.A., Chertopalov S., Bulir J., Fekete L., Vondracek M., Novotny M., Craciun V., Lancok J.* In Situ Optical and Electrical Analysis of Transient Plasmas Generated by ns-Laser Ablation for Ag Nanostructured Film Production // *Vacuum.* 2021. V. 193. P. 110528.
<https://doi.org/10.1016/j.vacuum.2021.110528>