

02;12
©1995

ЭМИССИЯ И ФРАГМЕНТАЦИЯ КЛАСТЕРОВ C_n^- И $Cs_m C_n^-$ ПРИ БОМБАРДИРОВКЕ ФУЛЛЕРИТА ИОНАМИ ЦЕЗИЯ

*И.В.Веревкин, С.В.Верзотуров,
Н.Х.Джемилев, С.Е.Максимов, В.В.Соломко*

При распылении графита ионами цезия образуется широкий спектр распыленных гомо- и гетероядерных углеродных кластеров [1]. Представляет большой интерес исследование закономерностей этого процесса при бомбардировке ионами цезия фуллерита, состоящего из молекул C_{60} . В этом случае можно ожидать проявления различий в эмиссии кластеров, поскольку фуллерит является уникальной структурной модификацией углерода [2]. Кроме того, в настоящее время все более актуальным становится изучение свойств кластеров вида $Cs_m C_n$, поскольку структуры металл-углерод (met-cars — “меткары”) являются перспективными для создания новых материалов с уникальными физическими и химическими свойствами [3].

В настоящей работе представлены результаты исследований масс-спектров и мономолекулярной фрагментации кластерных ионов C_n^- и $Cs_m C_n^-$, распыленных из фуллерита ионами Cs^+ с энергией 18 кэВ (плотность ионного тока на мишени составляла около 1 мА/см²). Эксперименты проводились на вторично-ионном масс-спектрометре с двойной фокусировкой обратной геометрии [4] при комнатной температуре мишени и в стационарных условиях выхода вторичных ионов, когда концентрация имплантированных атомов цезия в приповерхностном слое мишени становилась постоянной. В качестве мишени использовалась таблетка толщиной около 2 мм из порошка фуллерита высокой чистоты (очищенного от примеси кластеров C_{70}), впрессованная в держатель, изготовленный из нержавеющей стали. Использование первичных ионов Cs^+ позволило не только генерировать интенсивные потоки гетероядерных кластеров $Cs_m C_n^-$, но и существенно повысить выход гомоядерных кластеров C_n^- . Методики исследования масс-спектров и мономолекулярной фрагментации вторичных кластерных ионов подробно описаны в работах [5,6].

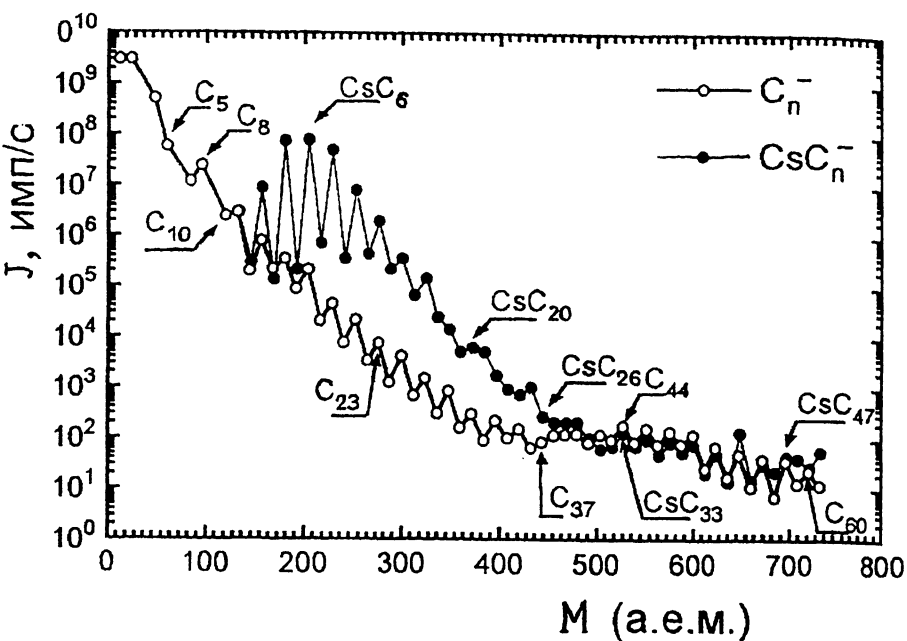


Рис. 1. Масс-спектры кластеров C_n^- и CsC_n^- , распыленных из фуллерита ионами Cs^+ с энергией 18 кэВ.

Масс-спектры вторичных кластерных ионов C_n^- , CsC_n^- представлены на рис. 1, а $Cs_2C_n^-$, $Cs_3C_n^-$ на рис. 2 соответственно.

Сравнение масс-спектра C_n^- с соответствующим спектром, полученным при распылении графита [1] ($n \leq 36$), показывает, что в случае фуллерита спектр богаче кластерами большого размера ($36 \leq n \leq 61$). Аналогично работе [1] для гомоядерных кластеров C_n^- наблюдается осцилляция в интенсивности пиков I в зависимости от четности числа n . При этом относительно больший выход нечетных кластеров наблюдается вплоть до $n = 37$, а затем характер осцилляций меняется, и вплоть до $n = 60$ интенсивность четных кластеров больше, чем нечетных. В нашем случае интенсивность гомоядерных кластеров в спектре падает с увеличением n медленнее, чем в случае графита (отношение $I(n = 21-23)/I(n = 1-2)$ у нас больше примерно на порядок).

Для гетероядерных кластеров $Cs_mC_n^-$ ($m = 1-3$) характер осцилляций зависимости $I(n)$ в диапазоне $n \leq 30$ также аналогичен описанному в работе [1]. Интенсивность гете-

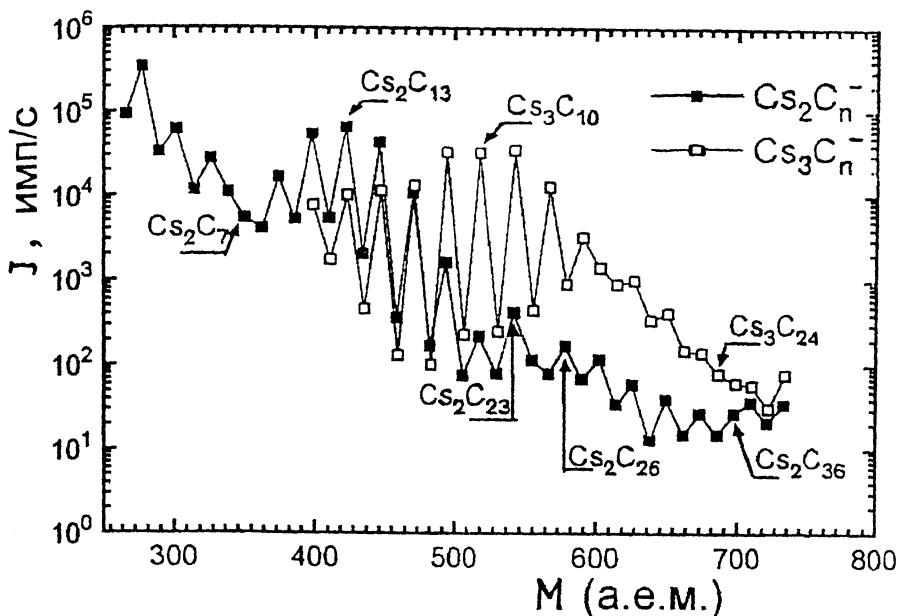


Рис. 2. Масс-спектры кластеров $Cs_2C_n^-$ и $Cs_3C_n^-$, распыленных из фуллерита ионами Cs^+ с энергией 18 кэВ.

роядерных кластеров в спектре падает с увеличением n несколько медленнее, чем в случае графита. Существенный интерес представляет область больших кластеров, которые не наблюдались в работе [1]. В случае CsC_n^- ($n = 33-47$) наблюдается ярко выраженное увеличение интенсивности нечетных кластеров. Наоборот, для $Cs_2C_n^-$ ($n = 26-30$) более интенсивны пики четных кластеров. Кроме того, по сравнению с графитовой мишенью относительная интенсивность кластеров $Cs_2C_n^-$ в области $n = 1-6$ выше примерно на два порядка. Для кластеров $Cs_3C_n^-$ существенных отличий от работы [1] не наблюдалось, за исключением появления в спектре пиков с $n = 24-28$.

Следует заметить, что корректная интерпретация масс-спектров вторичных кластерных ионов в настоящее время невозможна без учета из мономолекулярной фрагментации, поскольку кластеры эмитируются в колебательно-возбужденном состоянии с внутренними энергиями, достаточными для протекания этого процесса [5]. В результате фрагментации кластеров масс-спектры, существовавшие на момент эмиссии, трансформируются [7]. При этом более стабильные частицы проявляются в спектрах как более интенсивные пики, и наоборот.

Мы провели исследования фрагментации гомо- и гетероядерных углеродных кластеров, распыленных из фуллерита. Все каналы фрагментации, которые были обнаружены ранее при распылении графита [1], наблюдались и в случае фуллерита. Однако были зарегистрированы также и дополнительные каналы, которые ранее не проявлялись. Например, для гомоядерных кластеров углерода наряду с распадами вида $C_n^- \rightarrow C_{n-m}^- + C_m$ ($m = 1, 2, 3$) мы наблюдали распады вида $C_n^- \rightarrow C_5^- + C_{n-5}$ ($n = 8-12$) и $C_n^- \rightarrow C_{n-5}^- + C_5$ ($n = 9-14$), когда кластер распадается на осколки примерно равной величины. Так же как и при распылении графита [1], в случае фуллерита для гетероядерных кластеров в широком диапазоне изменения n типичным был распад $Cs_m C_n^- \rightarrow Cs_{m-1} C_n^- + Cs$.

Большее, по сравнению с графитом, многообразие каналов фрагментации кластеров, распыленных из фуллерита, связано, по-видимому, с механизмом колебательного возбуждения этих частиц в процессе эмиссии, на которое в значительной степени влияет структура распыляемого вещества.

Измеренные нами масс-спектры гомоядерных кластеров C_n^- имеют существенные отличия от данных работы [8], в которой приведены измеренные времяпролетным масс-спектрометром масс-спектры кластеров C_n^+ , распыленных из фуллерита ионами Ag^+ с энергий 5 кэВ. Методики приготовления мишеней в настоящей работе и в работе [8] различны. По-видимому, возникшее вследствие этого различие структур распыляемого вещества сказалось на процессе эмиссии крупных кластеров. В работе [8] распылялась тонкая пленка из молекул C_{60} , нанесенная на подложку из нержавеющей стали. В этом случае первичные ионы могли генерировать плотные каскады столкновений в металлической подложке. Выходом этих каскадов на поверхность (например, в виде ударных волн [9]), можно объяснить сравнимую по величине с эмиссией мономеров аномально высокую интенсивность эмиссии кластеров C_{60}^+ , наблюдавшуюся в [8]. В нашем случае образец имел относительно большую толщину (2 мм) и "рыхлую" структуру. В подобных структурах, характеризующихся низкой плотностью и малым атомным номером, каскады столкновений быстро затухают, а существование плотных каскадов, ответственных за выход крупных кластеров, маловероятно [10]. Эмиссия больших кластеров, в том числе и C_{60}^- , в данном случае может происходить по механизму, описанному в работах [11,12] за счет разброса энергетических потерь первичных ионов (the straggling of primary ion energy deposition).

Сравнение результатов настоящей работы с результатами работ [1] и [8] показывает, что, если область развития каскада столкновений ограничена собственно объемом углеродной субстанции, распыление фуллерита и графита происходит сходным образом. Под действием ионной бомбардировки происходит, по-видимому, деструкция молекул фуллерита и образуется приповерхностный слой, состоящий из молекул C_{60} и их осколков C_n ($n < 60$). Эмиссия колебательно-возбужденных сложных гомо- и гетероядерных молекулярных комплексов происходит именно из этой области, обогащенной имплантированными атомами цезия. Следует заметить, что предположение о существовании подобной области в графите высказывалось в работе [1]. На этой стадии процесса различие между фуллеритом и графитом состоит в том, что крупные колебательно-возбужденные углеродные кластеры C_n ($n \leq 60$) в приповерхностном слое фуллерита уже существуют. Очевидно, этим и можно объяснить в случае распыления фуллерита наличие крупных кластеров в масс-спектре и многообразии каналов их фрагментации.

Список литературы

- [1] Беккерман А.Д., Джемилев Н.Х., Ротштейн В.М. // Письма в ЖТФ. 1993. Т. 19. В. 6. С. 52-57.
- [2] Kroto H.W., Alloh A.W., Balm S.P. // Chem. Rev. 1991. V. 91. P. 1213-1235.
- [3] Pilgrim J.S., Duncan M.A. // Int. J. Mass Spectrom. Ion Proc. 1994. V. 138. P. 283-296.
- [4] Джемилев Н.Х., Беккерман А.Д., Ротштейн В.М., Цай Ю.М. // ПТЭ. 1990. № 3. С. 145-148.
- [5] Dzhemilev N.Kh., Verkhoturov S.V., Rasulev U.Kh. // Nucl. Instr. and Meth. 1987. V. B29. P. 531-536.
- [6] Bekkerman A.D., Dzhemilev N.Kh., Rotstein V.M. // Surf. and Interf. Anal. 1990. V. 15. P. 587-590.
- [7] Dzhemilev N.Kh., Goldenberg A.M., Veriooukin I.V., Verkhoturov S.V. // Int. J. Mass Spectrom. Ion Proc. 1991. V. 107. P. R19-R25.
- [8] Krättschmer W., Lamb Lowell D., Fostiropoulos K., Huffman Donald R. // Nature. 1990. V. 347. N 6291. P. 354-358.
- [9] Bitensky I.S., Parilis E.S. // Nucl. Instr. and Meth. 1987. V. B21. P. 26-36.
- [10] Sigmund P. // Appl. Phys. Lett. 1974. V. 25. P. 169-172.
- [11] Bitensky I.S. // Nucl. Instr. and Meth. 1993. V. B83. P. 110-116.
- [12] Bitensky I.S. // Nucl. Instr. and Meth. 1994. V. B88. P. 69-73.

Институт электроники
АН Узбекистана
Ташкент

Поступило в Редакцию
11 сентября 1995 г.