

МИНИСТЕРСТВО НАУКИ И ВЫСШЕГО ОБРАЗОВАНИЯ РОССИЙСКОЙ ФЕДЕРАЦИИ
ФЕДЕРАЛЬНОЕ ГОСУДАРСТВЕННОЕ АВТОНОМНОЕ ОБРАЗОВАТЕЛЬНОЕ
УЧРЕЖДЕНИЕ ВЫСШЕГО ОБРАЗОВАНИЯ
«НОВОСИБИРСКИЙ НАЦИОНАЛЬНЫЙ ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ
УНИВЕРСИТЕТ» (НОВОСИБИРСКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ УНИВЕРСИТЕТ, НГУ)

Факультет: **ФИЗИЧЕСКИЙ**

Кафедра: **ФИЗИКА ПЛАЗМЫ**

Направление подготовки **03.03.02 ФИЗИКА**

Образовательная программа: **БАКАЛАВРИАТ**

ВЫПУСКНАЯ КВАЛИФИКАЦИОННАЯ РАБОТА БАКАЛАВРА

ХАРЧЕНКО ВИКТОР АНДРЕЕВИЧ

(Фамилия, Имя, Отчество автора)

Тема работы: **ВРЕМЯПРОЛЕТНАЯ ДИАГНОСТИКА ПУЧКА КЛАСТЕРНЫХ ИОНОВ АРГОНА
НА СТЕНДЕ КЛИУС**

«К защите допущен»

Заведующий кафедрой

д.ф.-м.н., профессор

Иванов А. А

...../.....
(фамилия И., О.) / (подпись, МП)

«.....».....2018 г.

Научный руководитель

к.ф.-м.н.

Старший научный сотрудник ОПФ НГУ

Коробейщиков Н. Г./.....
(фамилия И., О.) / (подпись, МП)

«.....».....2018 г.

Дата защиты: «.....».....2018 г.

Новосибирск, 2018

Оглавление

Введение.....	3
Глава 1. Формирование ионно-кластерного пучка.....	5
1.1. Формирование газовых кластеров.....	5
1.2. Ионизация кластерного потока.....	8
1.3. Фокусировка ионно-кластерных пучков.	12
Глава 2. Времяпролетная диагностика ионно-кластерного пучка	Ошибка!
Закладка не определена.	
2.1. Описание стенда КЛИУС	16
2.2. Система анализа пучка	18
Глава 3. Результаты экспериментов и анализ полученных данных.....	Ошибка!
Закладка не определена.20	
3.1. Влияние давления торможения на масс-спектр пучка.....	20
3.2. Влияние условий ионизации на масс-спектр пучка	24
3.3. Масс-спектр ионно-кластерного пучка азота.....	27
Заключение	Ошибка! Закладка не определена.30
Список литературы	31

Введение

В середине XX века было установлено, что при адиабатическом истечении рабочего газа атомы или молекулы могут объединяться друг с другом. Этот эффект можно наблюдать при истечении газа, находившегося в некотором объеме при начальных значениях температуры T_0 и давлении P_0 , через отверстие сопла в область пониженного давления. При этом локальные температура и плотность газа уменьшаются. После пересечения адиабатой линии границы фаз, газ переходит в состояние пересыщения, и начинается процесс конденсации. Образовавшиеся в результате ассоциаты получили название «кластеры».

Для формирования высокоэнергетичных ($E \sim 10$ кэВ) кластерных пучков кластерный поток необходимо ионизовать. При взаимодействии с твердой поверхностью, ускоренные кластерные ионы проявляют ряд уникальных свойств. Во-первых, сталкиваясь с поверхностью мишени, атомы кластерного иона одновременно взаимодействуют с большим количеством атомов вещества[1]. Поэтому теория парных столкновений, разработанная для описания взаимодействия с поверхностью мономерных ионных пучков, не может быть применена для процессов взаимодействия кластеров с твердым телом. Во-вторых, каждый из атомов, составляющих кластерный ион, обладает удельной энергией, в N раз меньшей, чем полная энергия самого кластерного иона, и может достигать нескольких эВ (N – количество атомов в кластере). При таких низких энергиях фрагменты кластера, образовавшиеся в результате столкновения с твердой мишенью, распределяются локально по приповерхностному слою, не проникая вглубь обрабатываемой поверхности. Таким образом, воздействие атомарных и кластерных ионов на твердую мишень различается.

В настоящее время пучки ионизованных ускоренных кластеров используются для имплантации вещества на малые глубины (порядка сотен

нанометров), для осаждения сверхтонких пленок, для анализа поверхности и модификации ее свойств, для травления подложек, прецизионной бездефектной полировки, масс-спектрометрии на вторичных кластерных ионах и т.д. [2,3].

Воздействие, которое кластерные ионы оказывают на поверхность твердого тела, определяется их размерами и энергией. В процессе формирования ионно-кластерных пучков исследователи сталкиваются с проблемой фрагментации кластеров в процессе ионизации. Процесс фрагментации газовых кластеров представляет собой сложный стохастический процесс, состоящий из множества каналов реакций с разной степенью вероятности. Существенное влияние на процесс фрагментации оказывают условия проведения эксперимента (геометрия газового источника, режим ионизации и т.д.). Таким образом, контроль размеров кластерных ионов является важной задачей.

В данной работе с помощью времяпролетного метода получены и проанализированы масс-спектры ионно-кластерных пучков аргона при различных начальных параметрах (таких как давление торможения и ток эмиссии). На основе полученных данных будут выявлены оптимальные режимы работы установки для обработки поверхностей.

Глава 1. Формирование ионно-кластерного пучка

1.1. Формирование газовых кластеров

Кластером называют ансамбль из частиц (молекул, атомов или ионов), который представляет собой промежуточное состояние вещества между молекулой и жидким либо твёрдым телом[4]. Объединение из двух частиц (димер) уже принято называть кластером. Свойства кластера нелинейно зависят от числа частиц в нём.

В данной работе наибольшее внимание будет уделено газовым кластерам $((N_2)_N, Ar_N, (CO_2)_N$, и т.д.). В подобных структурах частицы (атомы или молекулы) чаще всего связаны между собой Ван-дер-ваальсовыми или водородными силами. Энергия связи в таких кластерах не превышает 1 эВ.

Наиболее распространённым методом создания газовых кластеров является получение кластеризованных струй при адиабатическом расширении газа в область пониженного давления через сверхзвуковые и звуковые сопла [5]. Как известно, при истечении газа в вакуум течение имеет форму расходящегося конуса. Поскольку в камере расширения всегда присутствует фоновое давление, на границе струя-фоновый газ возникают размытые области смешения, формирующие из конуса бочкообразную структуру. Струи, сформированные звуковыми соплами, при истечении в область пониженного давления ограничены «сбоку» боковыми скачками уплотнения и зоной смешения истекающего из сопла и фонового газов, а ниже по потоку – диском Маха. В зависимости от режима истечения газа, в струях, образованных сверхзвуковыми соплами, кроме диска Маха могут образовываться веретенообразные структуры, появившиеся в результате смыкания боковых скачков уплотнения. Боковые ударные волны в большей или меньшей степени препятствуют проникновению фонового газа в струю.

Таким образом, внутри «бочки» газ может адиабатически расширяться. Локальная плотность газа внутри бочки может быть существенно меньше плотности газа в окружающем пространстве, а температура опускаться до долей К. Расстояние до диска определяется по следующей формуле[5]:

$$\frac{x_m}{d} = 0.67 \left(\frac{p_0}{p_h} \right)^{1/2}, \quad (1)$$

где x_m — расстояние от сопла до диска Маха, d — диаметр критического сечения сопла, p_0 — давление в форкамере сопла (давлении торможения), p_h — давление в расширительной камере.

Формирование кластеров в струе начинается с образования димеров. Для объединения двух атомов или молекул в кластер необходимо тройное соударение. Третья частица унесет энергию, образовавшуюся в результате слияния двух частиц в димер. Дальнейший рост кластеров обеспечивается путём присоединения мономеров или агрегации конденсатов [6].



Рисунок 1. Фазовая диаграмма. $p_v(T)$ — двухфазная линия жидкости и газа, $p(T)$ — линия расширения газа [7]

Известно, что в молекулярном пучке, выделенном из сверхзвуковой струи с конденсацией, присутствуют и мономеры, и кластеры, причем

кластеры обладают широким распределением по размерам [8]. В настоящее время количественной теории формирования кластеров при адиабатическом расширении газа через сверхзвуковое сопло не существует. Однако, существуют эмпирические зависимости или численные модели. В работе [7] были приведены следующие рассуждения (рис 1): сначала система находится в точке **A** при давлении p_0 и температуре T_0 . Затем, при расширении, происходит переход по адиабате в точку **B**. В этой точке адиабата пересекает двухфазную линию жидкости. Дальнейшее расширение газа происходит вдоль адиабаты в область пересыщенного неравновесного состояния. Затем, в некоторой точке **C** неравновесное состояние разрушается и система делает возврат к равновесной линии $p_v(T)$.

Исследуя образование газовых кластеров при адиабатическом расширении при различных начальных условиях формирования струи, Хагена вывел полуэмпирический закон, позволяющий описывать процесс формирования кластеров. Хагеной был предложен безразмерный параметр подобия конденсации Γ [7]:

$$\Gamma = n_0 * d^q T_0^{(0.25q-1.5)}, \quad 1/2 < q \leq 1, \quad (2)$$

где n_0 — начальная плотность.

Позднее для оценки среднего размера кластеров был введен параметр $\Gamma^* = \Gamma/\Gamma_{ch}$ (Γ_{ch} — коэффициент, зависящий от сорта исследуемого газа [7]). На рис.2 изображен график зависимости среднего размера кластера $\langle N \rangle$ от параметра Γ^* [9]

$$\langle N \rangle = A \left(\frac{\Gamma^*}{1000} \right)^\gamma, \quad (3)$$

где A, γ — нелинейные коэффициенты, зависящие от Γ^* .

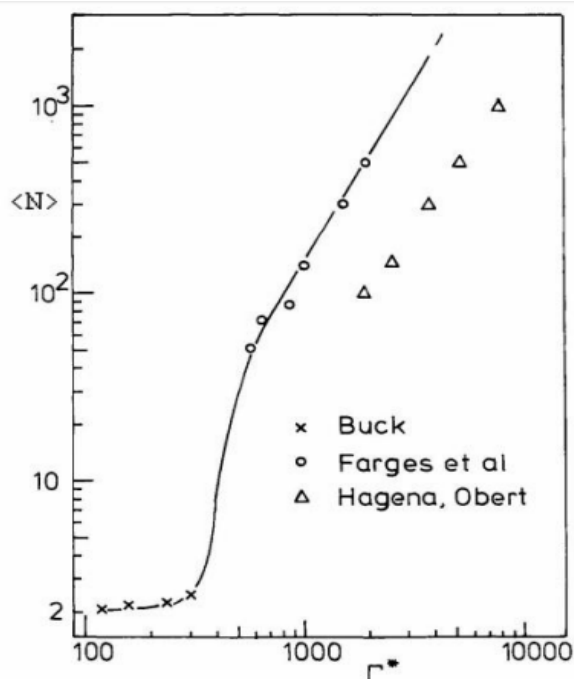


Рисунок 2. Зависимость среднего размера кластера от Γ^* [9]

1.2. Ионизация кластерного потока

Основными методами получения кластерных ионов в пучке являются: ионизация лазером или пучком заряженных частиц. В нашей работе ионизация кластерного пучка осуществлялась электронным ударом. Очевидно, что при ионизации электронным пучком некоторая часть кластеров разрушается на фрагменты [10]. Таким образом, функция распределения кластеров по размерам в потоке искажается, причем это искажение сильнее, чем при фотоионизации. На рис. 3 представлены графики функций распределения кластеров по размерам при использовании ударной ионизации электронным пучком и при фотоионизации. Считается, что фотоионизация отражает истинное распределения кластеров по размерам. К сожалению, при фотоионизации количество ионизованных кластеров в потоке невелико, что затрудняет регистрацию сигнала.

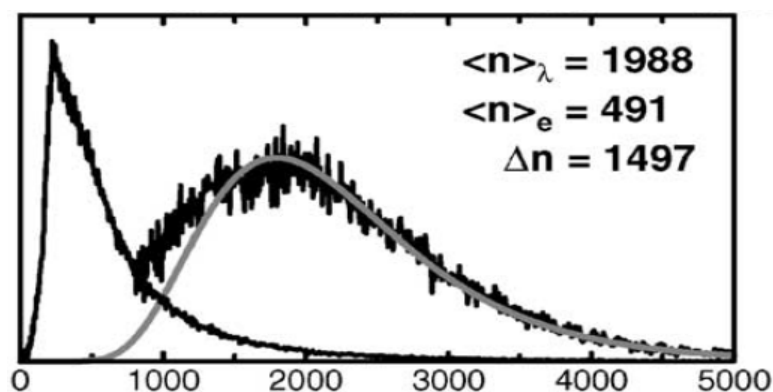


Рисунок 3. Функции распределения кластеров Ar_n по размерам в случаях ионизации струи электронным ударом (400 эВ, функция смещена влево) и лазером (6.42 эВ) [10]

В литературе [11] показано, что ионизация электронным ударом приводит к распаду малых кластеров (олигомеров) преимущественно на димеры и мономеры. Авторами было проведено моделирование процесса развала кластеров с последующим сравнением полученной зависимости и экспериментального результата. При моделировании поведения кластеров был использован квантово-классический подход. В энергетических переходах были учтены переходы между состояниями электронов, а движение рассматривалось с точки зрения классической физики. Энергия ионизации принималась равной 60 эВ.

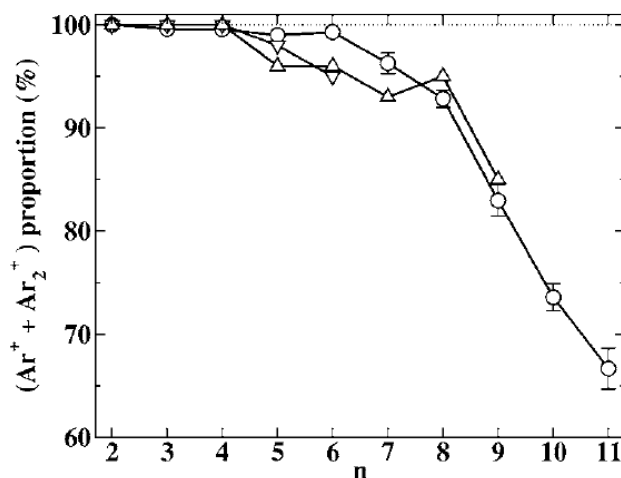


Рисунок 4. Процентное содержание $\text{Ar}^+ + \text{Ar}_2^+$. Круги — результат моделирования, треугольники — результаты эксперимента [11]

На рис. 4 представлены экспериментальные данные и результаты моделирования для кластеров Ar_N . Кривые отображают зависимости процентного содержания суммарного количества ионизованных мономеров и димеров кластеров Ar_N в диапазоне от 2 до 11-меров.

В этой же работе было установлено, что с ростом размера кластеров сильнее проявляется фрагментация (рис. 5). Причём для трех различных газов (ксенона, аргона, криптона) зависимость линейная. Такое поведение противоречит предположению, что развал кластеров должен уменьшаться при увеличении размера кластеров, так как рост кластера приводит к увеличению количества доступных степеней свободы, и, следовательно, кластеру легче перераспределить добавочную энергию.

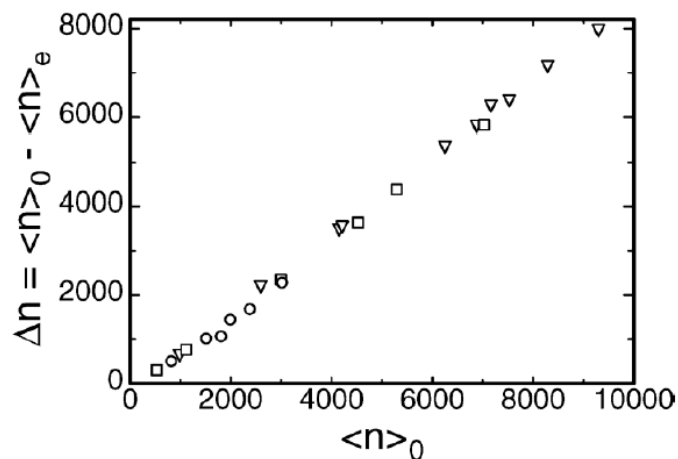


Рисунок 5. Фрагментация газовых кластеров, в зависимости от их среднего размера ($Ar(\circ)$, $Xe(\blacktriangledown)$, $Kr(\square)$)[11]

Авторы предположили, что линейный характер зависимости количества испарившихся атомов из кластера обусловлен множественным взаимодействием электронов с кластером. Энергия, затрачиваемая на каждое столкновение, может быть постоянной и независимой от размера кластера. Таким образом, увеличение количества столкновений приводит к росту фрагментации. Для подтверждения этой гипотезы авторы измерили зависимость развала от энергии ионизирующего электрона (рис. 6).

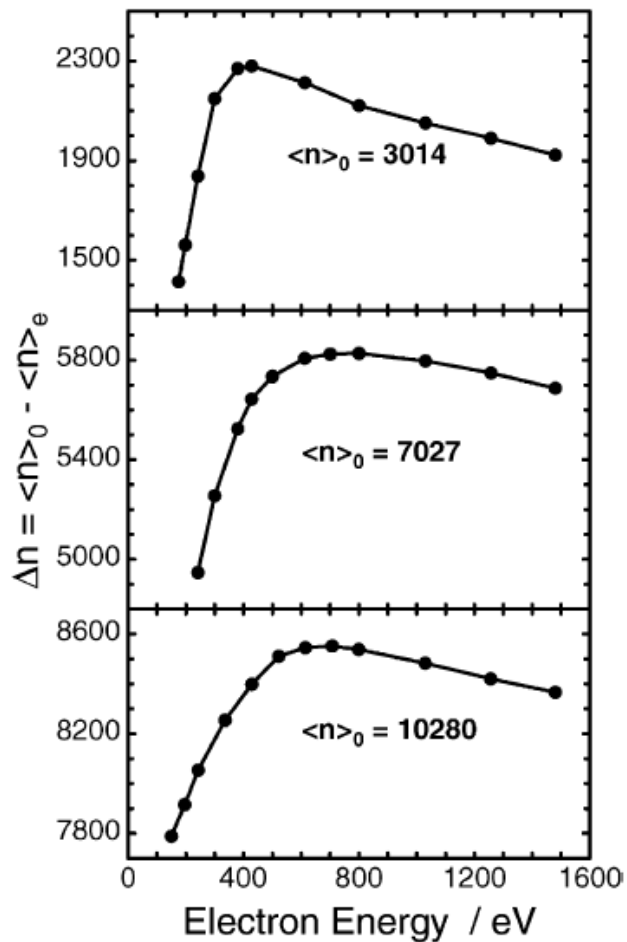


Рисунок 6. Зависимость развала кластера от энергии ионизирующего электрона для Ar Kr и Xe, соответственно [11]

Наибольший развал наблюдается при энергии 400 эВ для аргона, 710 эВ для ксенона и 750 эВ для криптона. Это поведение хорошо известно в случае остановки заряженной частицы, проникшей в твёрдое тело. Авторами были проведены модельные расчёты по проникновению в эти газы. При моделировании газы принимались как твёрдое тело, а остановка рассчитывалась по формуле:

$$S = \frac{dE}{dL} \frac{1}{\rho}, \quad (4)$$

где S — площадь поперечного сечения остановки, dE/dL — энергия, выделяемая на единице длины, ρ — плотность атомов в ед. объёма.

Результаты такой модели (рис. 7) согласуются с измеренной зависимостью от энергии. Положения пиков незначительно смещены, но форма кривых хорошо воспроизводится.

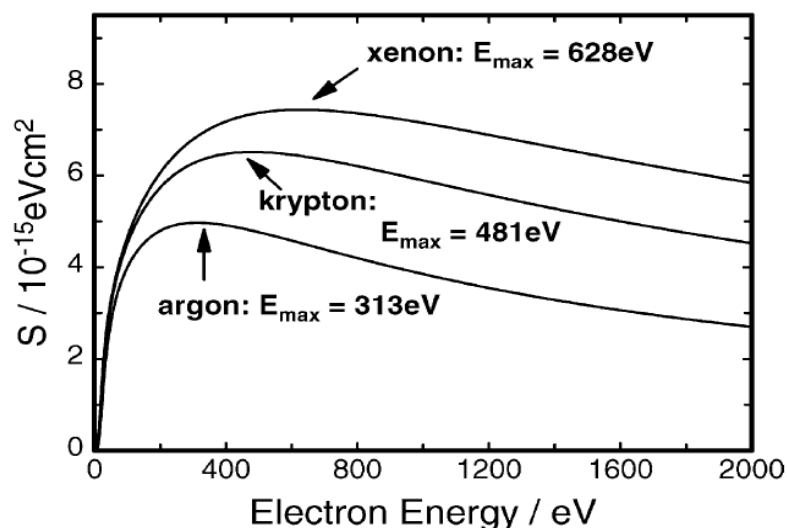


Рис. 7. Зависимость площади сечения торможения от энергии электрона [11]

Ионизация кластерных ионов является сложным стохастическим процессом и протекает на разных установках по-разному, что делает эту работу актуальной. Несмотря на то, что ударная ионизация приводит к развалу кластеров, она является наиболее удобной для использования на установке КЛИУС. Обнаруженная в работе [11] тенденция к уменьшению фрагментации крупных кластеров при возрастающей энергии ионизирующих электронов позволяет заключить, что для ионизации целесообразно использовать электронные пучки с энергий, близкой к 300 эВ.

1.3. Фокусировка ионно-кластерных пучков

В ионизованном кластерном пучке между кластерами ионами возникают кулоновские силы расталкивания, которые приводят к уменьшению интенсивности пучка. Поэтому для транспортировки кластерных ионов от ионизатора до детектора необходимо использовать

фокусировку. Существует несколько способов фокусировки заряженных частиц: электростатическая фокусировка, магнитная и фокусировка при помощи фонового газа [12].

Фокусировка пучка положительных ионов при помощи фонового газа осуществляется следующим образом: при столкновении положительных ионов пучка с фоновым газом расширительной камеры образуются электроны и относительно медленные положительные ионы. Медленные ионы выталкиваются электрическим полем быстрых ионов, а электроны остаются. К сожалению, такой способ позволяет достичь лишь частичной компенсации заряда в пучке. Кроме того, фокусировка при помощи фонового газа приводит к развалу кластеров.

В данной работе из-за малых габаритов установки использовалась фокусировка электростатическими линзами. Электростатическая линза представляет собой электрод определенной формы, находящийся под напряжением. Конфигурацию электродов принято определять при помощи уравнения Лапласа. Основным уравнением электронной оптики является [12]:

$$r''U + \frac{1}{2} * r'U' + \frac{1}{4} * rU'' = 0 , \quad (5)$$

Потенциал рассматривается вблизи оси симметрии ($r \ll 1$). В нулевой момент времени частица находится в начале координатной оси и имеет нулевую скорость. Знак производной $\partial^2 U / \partial z^2$ и знак заряда пролетающих частиц определяют, каким будет эффект: собирающим или рассеивающим.

Существует несколько типов осесимметричных электростатических линз: одиночные, катодные и иммерсионные. Электроды обычно представляют собой диафрагмы с отверстиями, либо проводящие каналы цилиндрической или конусообразной формы [13]. В простейшем случае — это одиночная диафрагма. На рис. 8 изображено поле собирающей линзы, к

которой с одной стороны примыкает однородное поле. В качестве нуля потенциала выбрана нулевая энергия электронов в нём. Фокусировка заряженных частиц осуществляется за счет радиальной компоненты напряжённости поля E_1 . Продольная компонента E_2 тормозит частицы.

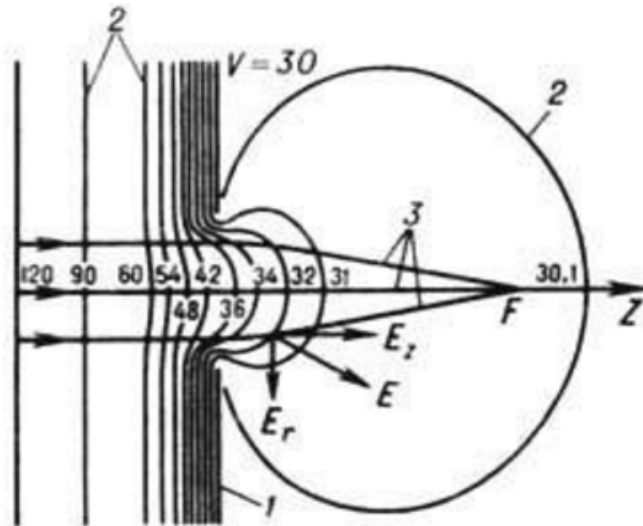


Рисунок 8. Собирающая линза. 1 — электрод, 2 — эквипотенциальные поверхности, 3 — траектории движения электронов, F — фокус линзы [13]

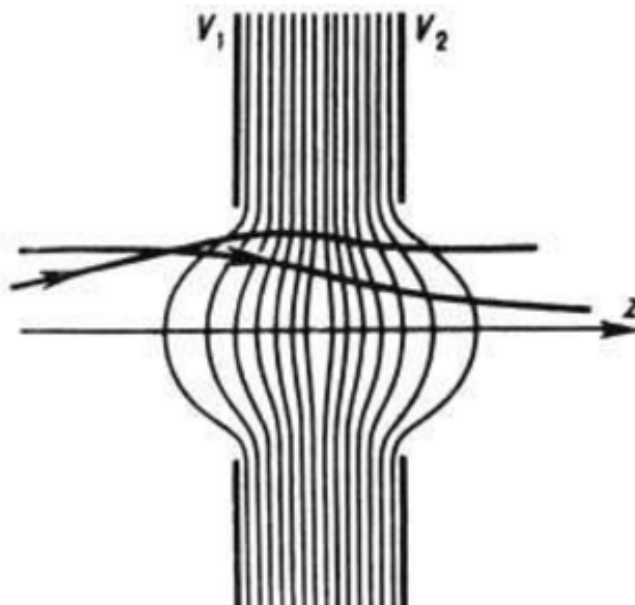


Рисунок 9. Иммерсионная линза. V_1 и V_2 — потенциалы электродов [13]

В случае различия между потенциалами крайних электродов линза называется иммерсионной (рис. 9). В такой конфигурации показатели

преломления, пропорциональные квадратному корню потенциалов, с обеих сторон будут различаться. Соответственно, отношение между фокусами и потенциалами линзы в пространстве объектов f_0, V_0 и изображений f_i, V_i :

$$\frac{f_0}{f_i} = \sqrt{\frac{V_0}{V_i}}. \quad (6)$$

Таким образом, оптимальным вариантом фокусировки пучков кластерных ионов на установке КЛИУС является фокусировка при помощи электрических полей, создаваемых электростатическими линзами.

Глава 2. Времяпролетная диагностика ионно-кластерного пучка

2.1. Описание стенда КЛИУС

Газодинамический стенд КЛИУС сконструирован в ОПФ НГУ с целью изучения процессов формирования кластеров в сверхзвуковых газовых потоках, а также для изучения взаимодействия ионно-кластерных пучков с поверхностью исследуемых материалов. Схема формирования ионно-кластерного пучка приведена на (рис. 10).

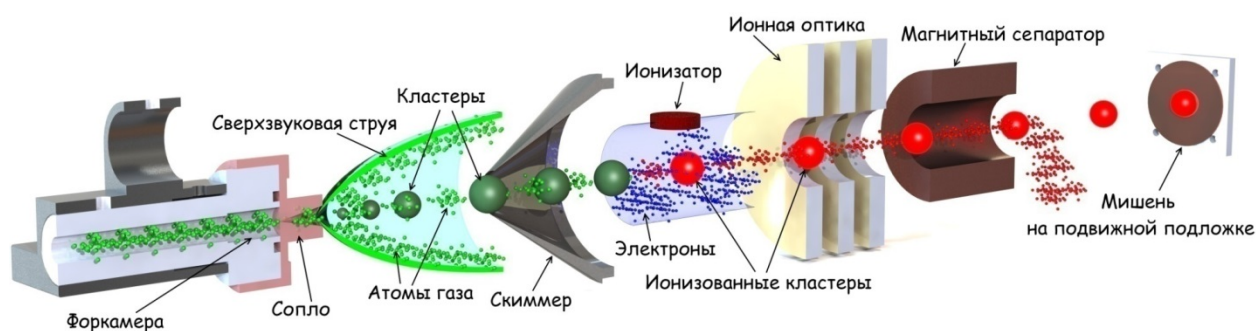


Рисунок 10. Схема формирования ионно-кластерного пучка на установке КЛИУС

Вакуумная часть установки состоит из трех камер: камера расширения, буферная камера, камера ионизации и ускорения. Каждая из камер снабжена датчиком давления и откачивается независимо. Это позволяет поддерживать необходимое рабочее давление на всех этапах формирования пучка. Рассмотрим более подробно каждую из систем.

В камере расширения установлен газоструйный источник на однокоординатном приводе, который позволяет передвигать сопло вдоль оси пучка. В данной работе использовалось коническое сверхзвуковое сопло. Критический диаметр сопла $d_{кр} = 0,28$ мм, длина конуса $L_n = 10$ мм, а диаметр выходного сечения $D = 2,41$ мм. Камера расширения откачивается с помощью форвакуумного насоса Kashiyama MU100 с производительностью

1660 л/мин и бустерного турбомолекулярного насоса Shimadzu TMP-2203 с производительностью 2000 л/сек. В рабочем режиме давление внутри камеры не превышает $2 \cdot 10^{-2}$ торр. Фоновое давление во всех камерах измеряется при помощи вакуумметров TeleVac CC-10. Давление в газовом источнике регулируется при помощи контроллера давления Alicat Scientific PCD-100PSIA.

Кластерный поток выделяется из сверхзвуковой струи при помощи двух конических скиммеров. Буферная камера откачивается форвакуумным насосом Anest Iwata ISP-500C с производительностью 600 л/мин и турбомолекулярным насосом Edwards STP-iXR1606 с производительностью 1600 л/сек.

В следующей камере происходит ионизация и ускорение потока кластеров. Камера ионизации и ускорения откачивается форвакуумным насосом Anest Iwata ISP-500C с производительностью 600 л/мин и двумя турбомолекулярными насосами Edwards STP-iXR3306C с производительностью 3000 л/сек у каждого, что позволяет снизить фоновое давление в этой камере до $3 \cdot 10^{-5}$ торр. Кластерный пучок ионизируется электронным ударом. Для генерации электронного пучка используется термокатод, который представляет собой пластину из гексаборида лантана. Электроны, эмитируемые из термокатада, ускоряются анодом до энергии 300 эВ, и попадают на поток нейтральных кластеров. Ускорение и фокусировка ионизованных кластеров осуществляется посредством 4-электродной ионно-оптической системы (ИОС). В рабочем режиме энергия ускоренных кластерных ионов достигает 25 кэВ. За ИОС возможна установка магнитного сепаратора с максимальной индукцией до 600 мТ, осуществляющего удаление мономеров из ионно-кластерного пучка.

Ионно-кластерный ток регистрировался цилиндром Фарадея и записывался через 8-канальный АЦП R-Technology USB-3000 на компьютер.

2.2. Система анализа пучка

Для анализа распределения частиц пучка по массам была создана оригинальная времяпролетная методика. Ее принцип заключается в том, что фокусирующий электрод играет роль клапана. К фокусирующему электроду через формирователь высоковольтных импульсов МАНТИГОРА HV5-20-10 подключен генератор прямоугольных импульсов, который осуществляет управление напряжением на электроде. При отсутствии сигнала с генератора фокусирующий электрод находится под потенциалом 6 кВ и не пропускает через себя кластерные ионы, которые затем откачиваются насосами. Кластерные ионы, не подвергшиеся ускорению, не могут преодолеть этот потенциальный барьер потому, что их энергия очень мала в сравнении с высотой барьера и обычно не превышает 100 эВ [14]. Когда с генератора приходит сигнал, потенциал на фокусирующем электроде становится равным нулю, и ионно-кластерный пучок может свободно проходить сквозь ионно-оптическую систему. Частота импульсов с генератора составляет 10 Гц, амплитуда ~ 4 В. Длительность прямоугольных импульсов составляла 6 мкс, при этом длительность переднего фронта импульса не превышала 1 микросекунды. Таким образом, кластерные ионы подавались на детектор порциями. Длительность импульса подобрана таким образом, чтобы интенсивность сигнала не превышала нижний предел чувствительности регистрирующей аппаратуры.

Скорость движения кластеров, имеющих одинаковую энергию и заряд, определяется их массой. Следовательно, массу кластеров можно вычислить, зная время, за которое они достигают детектора.

$$\frac{m}{z} = \frac{2E}{l^2} t^2, \quad (7)$$

где m — масса кластерного иона, E — его энергия, l — длина пролетной базы, t — время, необходимое кластерному иону для достижения мишени. Длина пролетной во времяпролетных экспериментах составляет 0,83 м.

Глава 3. Результаты экспериментов и анализ полученных данных

3.1. Влияние давления торможения на масс-спектр пучка

Известно, что при высоких давлениях в отсутствие ионизатора пучок кластеров аргона состоит преимущественно из крупных кластеров с небольшой примесью кластеров малого размера [8]. На рис. 11 изображены масс-спектры пучка кластерных ионов аргона для различных давлений торможения в отсутствие магнитного сепаратора.

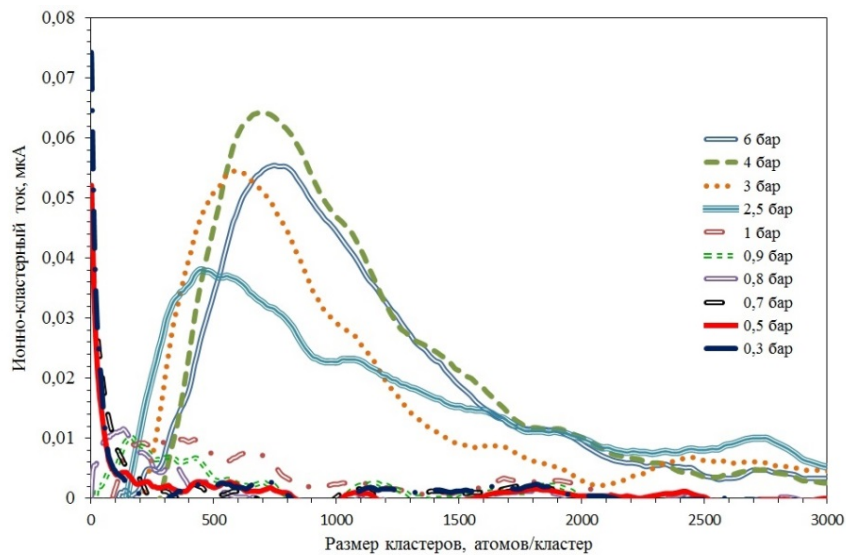


Рис. 11. Распределения кластерных ионов аргона по массам при различных давлениях рабочего газа. Магнитный сепаратор отсутствует.

На представленных графиках при высоких давлениях мономерная компонента не наблюдается. Такой результат наблюдается по следующей причине. При высоких давлениях торможения до 30 % мономеров в струе конденсируется, образуя кластеры. Как известно, наиболее крупные кластеры собираются на оси пучка, вытесняя мономеров и малые кластеры на периферию. Таким образом, концентрация мономерной компоненты вдоль оси пучка снижается. Кроме того, сечение ионизации кластеров $\sim N^{2/3}$,

поэтому концентрация ионизованных крупных кластеров много больше, чем концентрация ионизованных мономеров.

На рис. 12 изображены масс-спектры пучка кластерных ионов аргона для различных давлений при установленном магнитном сепараторе. При низких давлениях торможения наблюдавшаяся в отсутствие магнитного сепаратора мономерная компонента отсутствует. Следовательно, магнитный сепаратор позволяет эффективно удалять малые кластеры из пучка кластерных ионов, что может быть полезно при обработке твердых поверхностей.

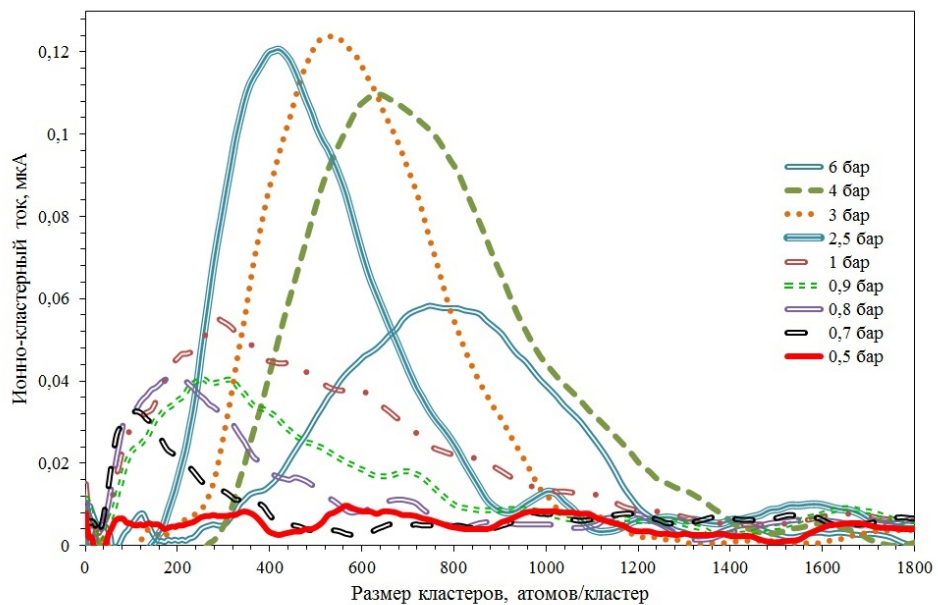


Рис. 12. Распределения кластерных ионов аргона по массам при различных давлениях рабочего газа. Установлен магнитный сепаратор.

На рис. 11 и рис. 12 существенно отличаются амплитуды сигналов. Это связано с тем, что эти две серии экспериментов были выполнены при различных токах эмиссии. Ток эмиссии зависит от концентрации электронов в ионизаторе. С ростом тока эмиссии в пучке увеличивается количество многократно ($q > 2$, где q – заряд) ионизованных кластеров. Таким образом, пучком переносится больший заряд и, как следствие, ток на цилиндре

Фарадея растет. Подробнее о влиянии ионизации будет сказано в следующем разделе.

Известно, что масс-спектр ионно-кластерного пучка может быть аппроксимирован логнормальным распределением (8). Это позволяет определить эффективный средний размер кластерных ионов в пучке, который является основным параметром при дальнейшей обработке результатов (9).

$$f(n) = \frac{1}{\sqrt{2\pi n\sigma}} \exp\left(-\frac{(\ln n - \mu)^2}{2\sigma^2}\right), \quad (8)$$

$$N_{mean} = \exp\left(\mu + \frac{\sigma^2}{2}\right), \quad (9)$$

где $-\infty < \mu < \infty$ и $\sigma > 0$ – параметры логнормального распределения.

На рис. 13 показана возможность аппроксимации масс-спектра пучка кластерных ионов логнормальной функцией распределения.

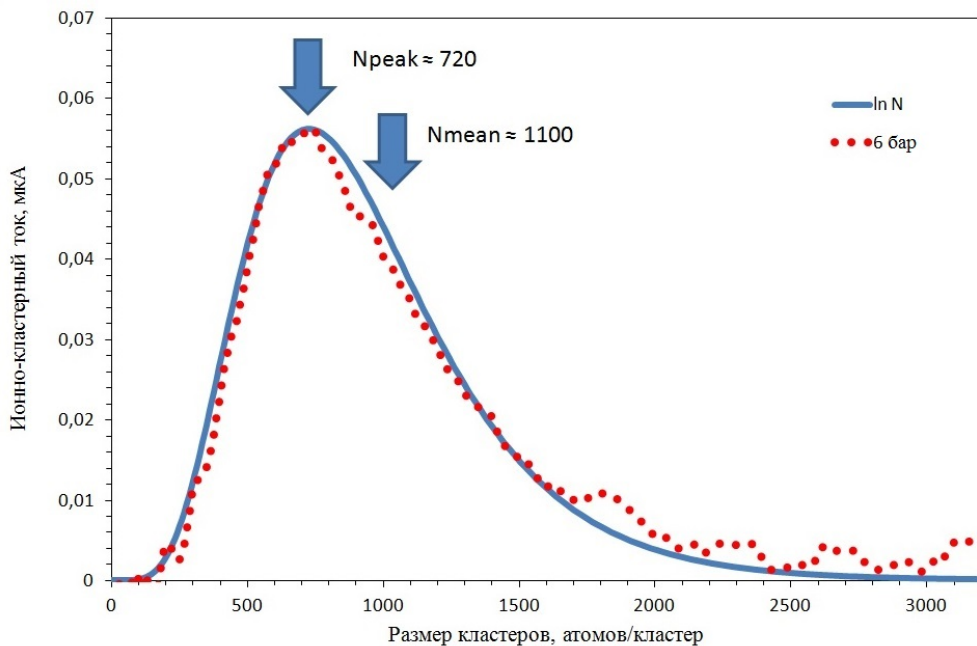


Рис. 13. Пример аппроксимации масс-спектра ионно-кластерного пучка аргона логнормальным распределением ($p_0 = 6$ бар).

График зависимости среднего размера кластерных ионов от давления P_0 представлен на рис. 14. Полученная в результате аппроксимации

логнормальной функцией кривая имеет форму, схожую с формой оценки по параметру Хагены.

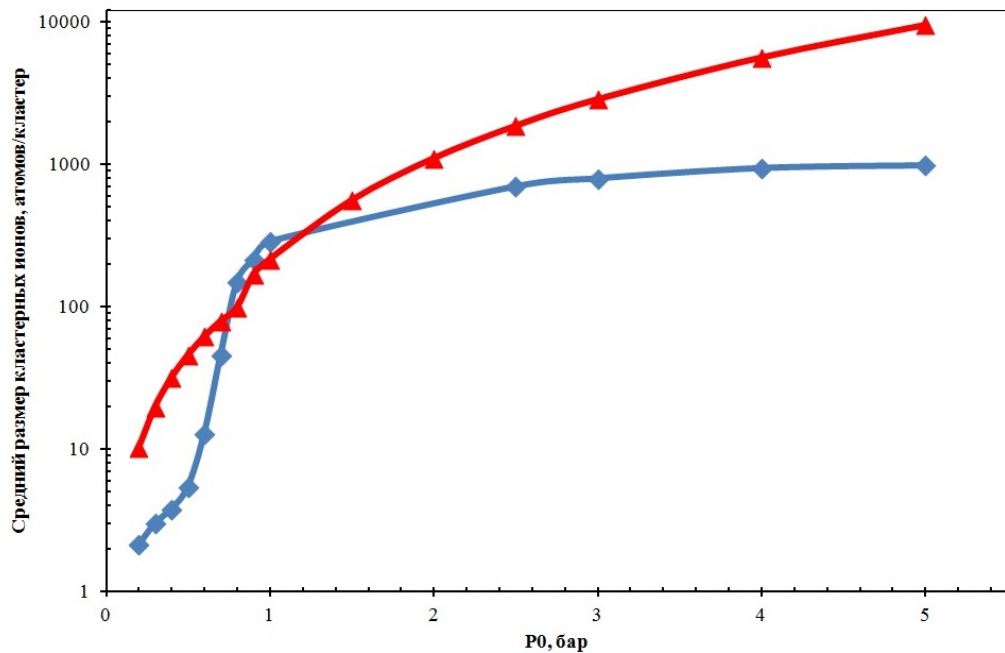


Рис. 14. Зависимость среднего размера кластерных ионов аргона от давления. Магнитный сепаратор отсутствует. Ромбы – экспериментальные результаты, треугольники – оценка по параметру Хагены (3)

При давлениях торможения $P_0 < 0,7$ бар в пучке присутствуют в основном мономеры и кластеры малого размера. Это связано с тем, что при таких давлениях торможения плотность газа в потоке не достаточно велика для интенсивной конденсации. При давлениях $0,7 < P_0 < 1$ бар в пучке начинают появляться более крупные кластеры. Плотность газа в струе возросла, что привело к увеличению количества столкновений между атомами, и, как следствие, к появлению кластеров более крупного размера. При этом на оси струи еще присутствует большое количество мономеров, которые могут быть присоединены кластерами. Этим объясняется интенсивный рост размеров кластерных ионов, и, следовательно, среднего размера кластерных ионов в пучке. При $P_0 > 1$ бар в пучке преобладают крупные кластеры, однако размер кластеров с ростом давления торможения увеличивается менее интенсивно. Рост кластеров осуществляется за счет

присоединения преимущественно других кластеров. Это и является причиной замедления роста среднего размера кластеров.

3.2. Влияние условий ионизации на масс-спектр пучка

На распределение масс в пучке кластерных ионов существенное влияние оказывают условия ионизации, а именно энергия ионизирующих электронов и их концентрация. Как упоминалось ранее, энергия электронов составляла 300 эВ и не изменялась. Концентрацию электронов, пересекающих кластерный пучок, можно регулировать, меняя ток, протекающий через термокатод. О концентрации электронов в ионизаторе можно судить по току, который возникает, когда эти электроны попадают на стенки ионизатора. Этот ток назовем током эмиссии.

На рис. 15 и рис.16 изображены масс-спектры кластерных ионов аргона при различных токах эмиссии при давлениях 3 и 5 бар соответственно. Видно, что с ростом тока эмиссии происходит смещение распределения влево. Причинами такого поведения распределения могут служить как фрагментация кластеров, так и увеличение среднего заряда ионно-кластерного пучка вследствие появления многозарядных кластеров. Рассмотрим, как меняется полный ток в импульсе (рис. 17). Если предположить, что средний заряд пучка возрастает, то должно наблюдаться увеличение тока на коллекторе. Однако, из графика видно, что ток падает, следовательно, количество многозарядных кластеров в пучке не только не возросло, но и уменьшилось. Таким образом, смещение распределения кластерных ионов вызвано их фрагментацией (развалом).

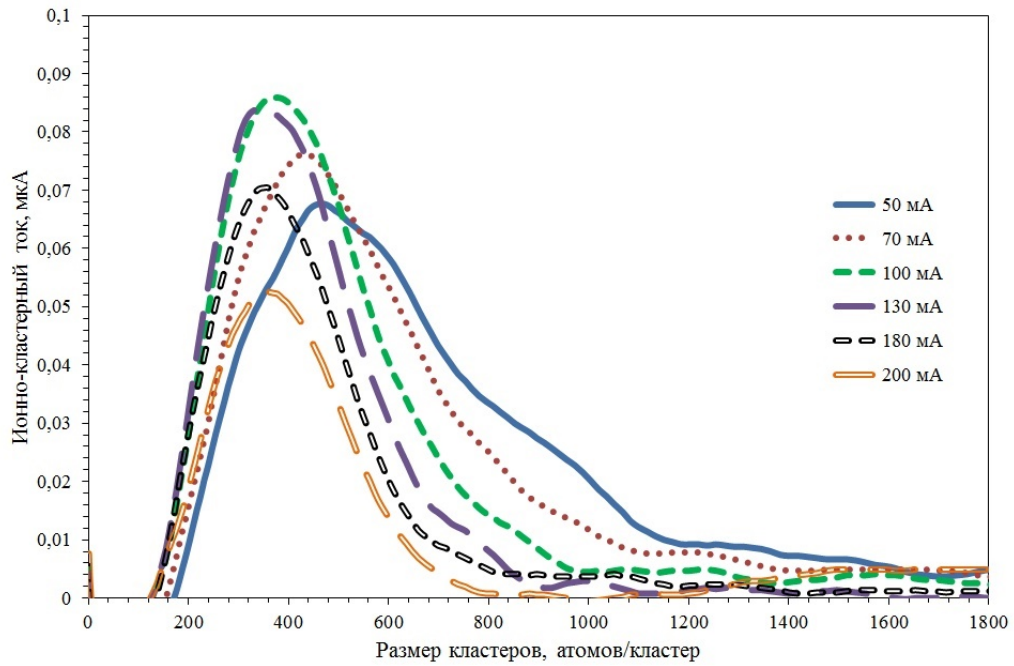


Рис. 15. Масс-спектры кластерных ионов аргона при различных условиях ионизации. Давление рабочего газа 3 бар.

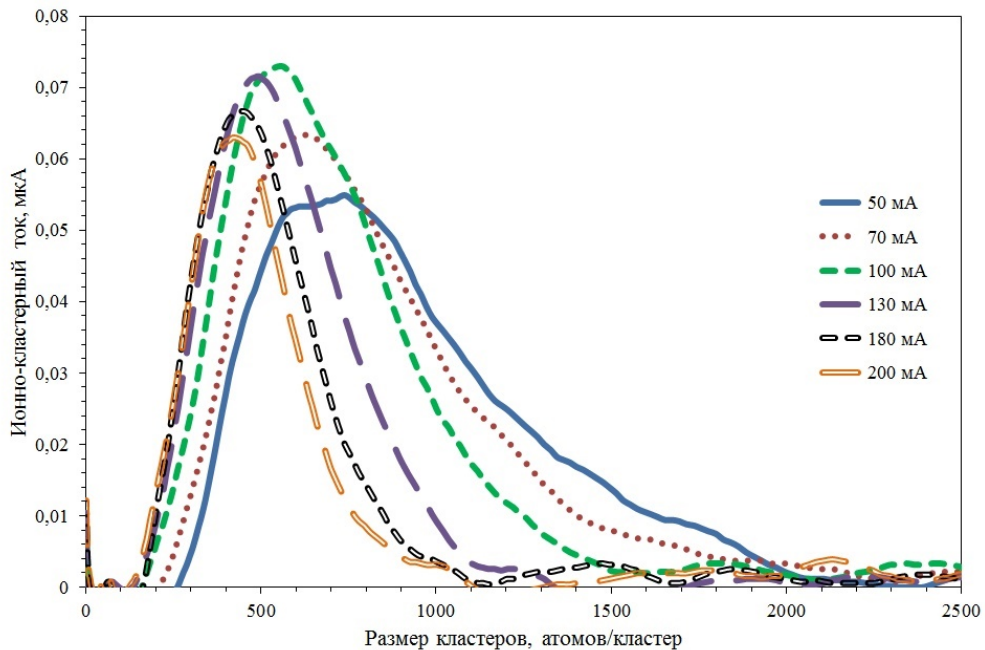


Рис. 16. Масс-спектры кластерных ионов аргона при различных условиях ионизации. Давление рабочего газа 5 бар.

При увеличении тока эмиссии количество электронов в ионизаторе возрастает, что повышает вероятность ионизации нескольких атомов в

кластере. Атомы в кластерах аргона удерживаются вместе силами Ван-дер-Ваальса, энергия которых составляет порядка 10 мэВ. При многократной ионизации между ионизованными атомами возникают кулоновские силы, энергия которых намного превышает энергию Ван-дер-Ваальсовых сил. Это может приводить к развалу кластера на фрагменты меньшего размера. Такой процесс называют кулоновским взрывом. Однако, в силу того, что процесс носит вероятностный (стохастический) характер, то при рабочих параметрах нашей установки таких кластеров очень мало.

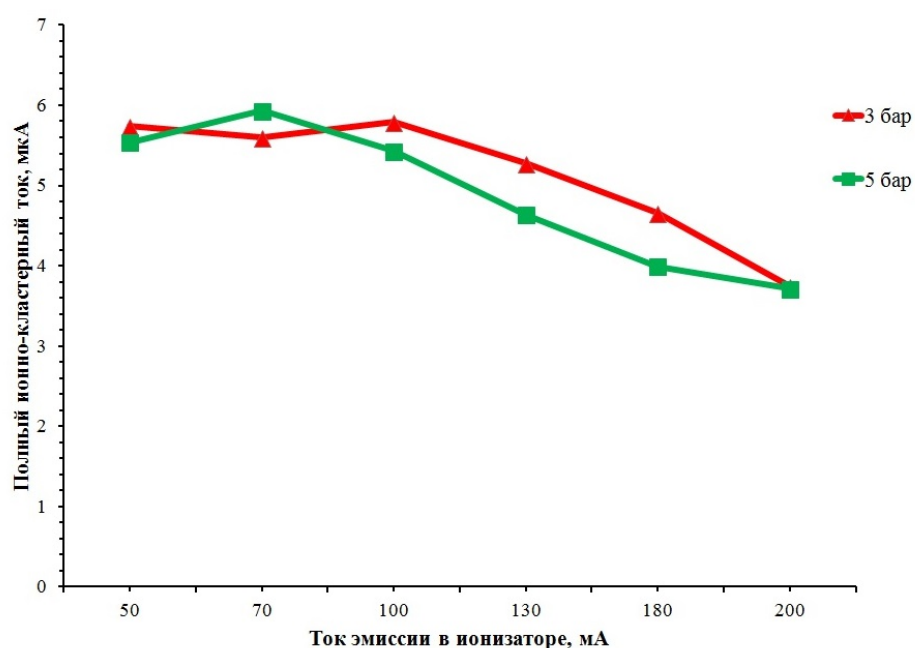


Рис. 17. Графики зависимости полного ионно-кластерного тока от тока эмиссии.

Есть и другой возможный механизм фрагментации кластеров. Как упоминалось выше, энергия электронов в ионизаторе составляет 300 эВ, что намного больше энергии Ван-дер-Ваальсовского взаимодействия в кластере. Взаимодействуя с кластером, электрон может передать ему часть своей энергии. Если эта энергия превысит энергию сил Ван-дер-Ваальса, то кластер разделится на фрагменты, потеряв часть нейтральных частиц. Данный процесс называют испарением кластеров.

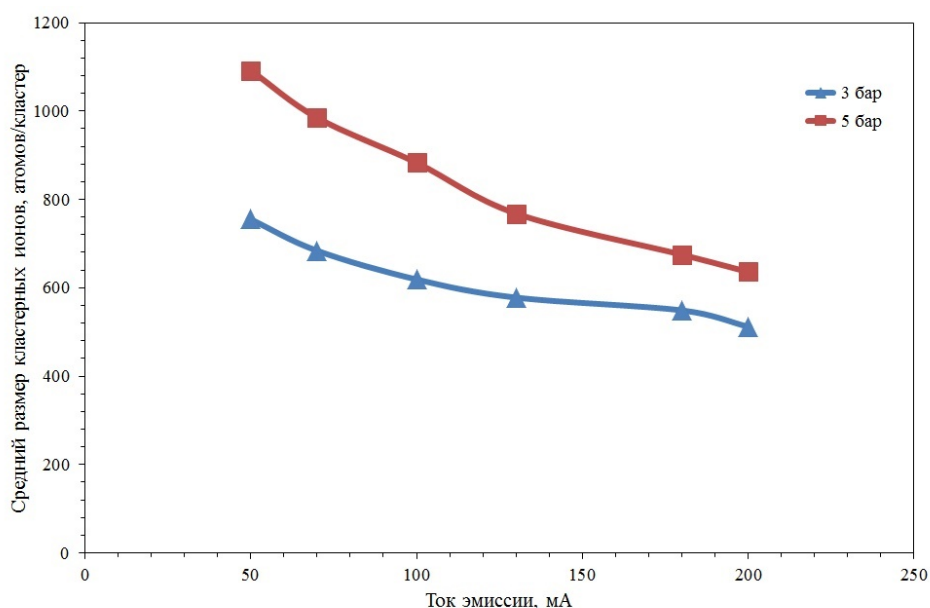


Рис. 18. Зависимость среднего размера кластерных ионов аргона при различных условиях ионизации и давлениях рабочего газа.

На рис. 18 представлены графики зависимостей среднего размера кластерных ионов от тока эмиссии при давлениях 3 и 5 бар. При давлении торможения 3 бар график имеет меньший наклон. Следовательно, кластеры меньшего размера слабее реагируют на изменение тока эмиссии. Это так же показывает, что кластеры меньшего размера имеют меньшее сечение ионизации, которое пропорционально $N^{2/3}$.

3.3. Масс-спектр ионно-кластерного пучка азота

На рис. 19 изображены масс-спектры кластерных ионов молекулярного азота при различных давлениях торможения. Как видно, молекулярный азот слабо конденсируется в наших условиях, поэтому вне зависимости от давления P_0 пучок кластерных ионов азота состоит преимущественно из мономеров. При установленном магнитном сепараторе такие кластеры полностью удаляются с оси пучка (рис. 20).

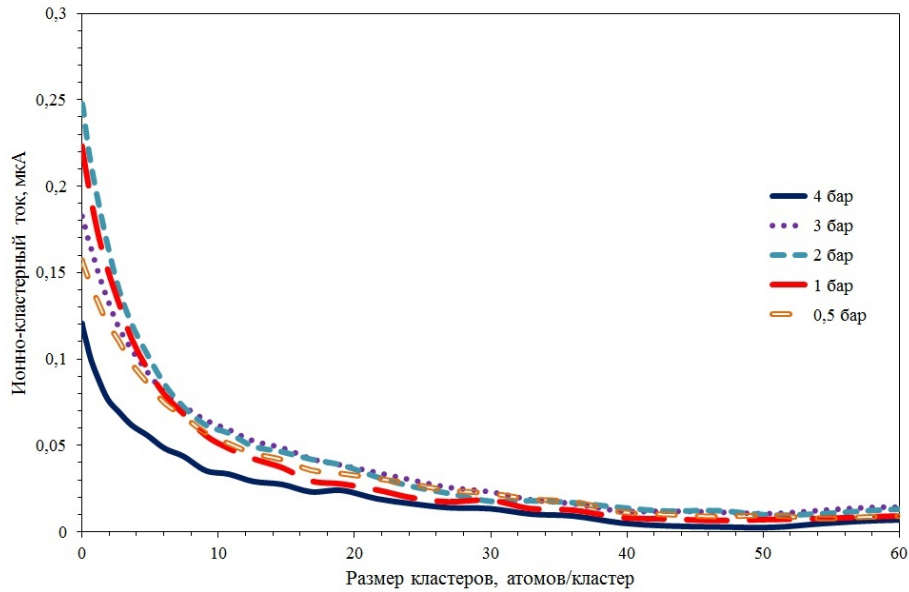


Рис. 19. Распределения кластерных ионов N_2 по массам при различных давлениях рабочего газа. Магнитный сепаратор не установлен.

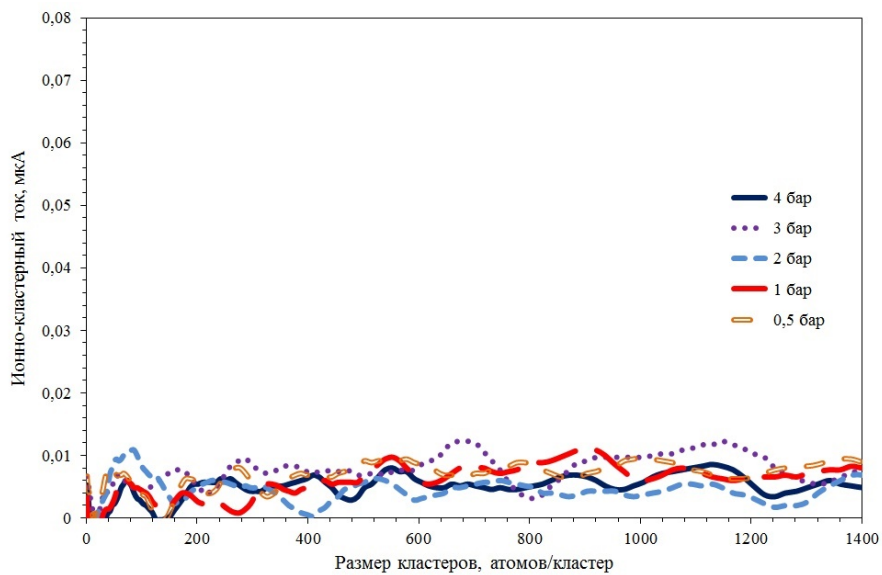


Рис. 20. Распределения кластерных ионов N_2 по массам при различных давлениях рабочего газа. Установлен магнитный сепаратор.

При давлении $P_0 \geq 3$ бар ионно-кластерный ток начинает уменьшаться (рис. 18). Есть два механизма, объясняющих это явление. Первый механизм связан с уменьшением расстояния от среза сопла до диска Маха при росте давления торможения. Как следствие, входное отверстие скиммера

оказывается в области ударных волн. Второй механизм – так называемое скиммерное взаимодействие, характеризующееся взаимодействием набегающего потока с отраженными от поверхности скиммера атомами. Рассмотрим каждый механизм подробнее.

Атомы, находящиеся внутри струи, защищены от влияния фонового газа областью ударных волн. Но когда размер струи становится меньше расстояния между скиммером и соплом, входное отверстие скиммера оказывается в области ударных волн. В этой области атомы и кластеры теряют продольную скорость. Как следствие, интенсивность пучка уменьшается. Длина струи может быть оценена по формуле (1). В экспериментах с азотом минимальная длина струи при давлении 4 бар составила 34,6 мм, что превышает расстояние между скиммером и соплом (20,2 мм).

Второй механизм основан на взаимодействии отраженных от скиммера атомов с кластерным пучком. При достаточно интенсивном потоке перед входным отверстием скиммера может формироваться ударная волна, на которой происходит торможение набегающих частиц. Степень влияния этого механизма может быть оценена при помощи числа Кнудсена:

$$K_n = \frac{\lambda}{d_{sk}}, \quad (10)$$

где λ – средняя длина свободного пробега, d_{sk} – диаметр скиммера. К сожалению, оценить длину свободного пробега не представляется возможным, поскольку для этого необходимо определить число Маха на выходе из сопла. Таким образом, установлено, что в наших условиях молекулярный азот конденсируется слабо. Следовательно, он не подходит для обработки поверхностей на установке КЛИУС при текущих ее параметрах.

Заключение

На основании изученных работ по теме кластерообразования, ионизации газовых потоков, а также на основании полученных данных, было получено представление о формировании и транспортировке ионно-кластерных пучков.

На стенде КЛИУС Создана и отлажена времяпролетная методика масс-спектрометрии сверхзвуковых газовых потоков с кластерами.

Получены и проанализированы масс-спектры ионно-кластерных пучков аргона. В работе исследовано влияние давления торможения и ионизации на масс-спектр ионно-кластерного пучка. Установлено, что при высоких давлениях торможения размер кластерных ионов в наших условиях в пучке может достигать 10^3 атомов/кластер. При этом мономерная компонента в пучке не наблюдается. Также в работе показано, что масс-спектры ионно-кластерных пучков действительно могут быть аппроксимированы логнормальной функцией распределения.

В результате работы было установлено, что увеличение концентрации ионизирующих электронов в ионизаторе приводит к фрагментации (развалу) кластеров.

Список литературы

1. Yamada I., Matsuo J., Toyoda N., Aoki T., Seki T. Progress and applications of cluster ion beam technology //Current Opinion in Solid State and Materials Science. – 2015. – Т. 19. – №. 1. – С. 12-18.
2. Yamada. I. Materials Processing by Cluster Ion Beams: History, Technology, and Applications. – CRC press, 2015.
3. Pauly H. Atomic, Molecule and Cluster Beams. - Berlin: Springer-Verlag, 2000.
4. Петров Ю. И. Кластеры и малые частицы // М.: Наука, 1986 —368 с.
5. Иешкин А. Е. Дис. на соиск. учен. степ. канд. физ.-мат. наук (01.04.04.) // МГУ. М. 2015.
6. Смирнов Б. М.. Процессы с участием малых частиц в возбужденном или ионизованном газе// М.: Логос, 2012.
7. Hagena O. F. Nucleation and growth of clusters in expanding nozzle flows //Surface Science. – 1981. – Т. 106. – №. 1-3. – С. 101-116.
8. Александров М. Л., Куснер Ю С. Газодинамические молекулярные, ионные и кластированные пучки. – Наука, 1989
9. Wörmer J., Guzielski V., Stapelfeldt J., Möller T.. Fluorescence excitation spectroscopy of xenon clusters in the VUV //Chemical Physics Letters. – 1989. – Т. 159. – №. 4. – С. 321-326.
10. Bonhommeau D., Halberstadt N., Viel A. Fragmentation dynamics of argon clusters (Ar n , $n= 2$ to 11) following electron-impact ionization: modeling and comparison with experiment //The Journal of chemical physics. – 2006. – Т. 124. – №. 18. – С. 184314.
11. Buck U., Schutte S. Strong fragmentation of large rare gas clusters by high energy electron impact //International Journal of Mass Spectrometry. – 2002. – Т. 220. – №. 2. – С. 183-192.
12. Буш Г. Электронная оптика. I. Основы и развитие электронной оптики //Успехи физических наук. – 1937. – Т. 17. – №. 4. – С. 470-476...

13. Кельман В. М. Электронная оптика // В.М. Кельман и С.Я. Явор; АН СССР, Физико-техн. ин-т им. А.Ф. Иоффе. – Изд. 2-е, перераб. и доп. – М.; Л.: Изд-во АН СССР, 1963. С -362.

14. Коробейщиков Н. Г., Каляда В. В., Шмаков А. А. и др. Экспериментальное исследование ускоренных ионно-кластерных пучков аргона //Письма в Журнал технической физики. – 2014. – Т. 40. – №. 1. – С. 50-57.