#### В. Ж. Мадирбаев, А. Е. Зарвин

Новосибирский государственный университет ул. Пирогова, 2, Новосибирск, 630090, Россия E-mail: madirbaev@phys.nsu.ru

# ИОННО-КЛАСТЕРНОЕ ВОЗБУЖДЕНИЕ УРОВНЕЙ АТОМАРНОГО АРГОНА В СМЕСЯХ С МОЛЕКУЛЯРНЫМИ ГАЗАМИ <sup>\*</sup>

Экспериментально изучены процессы возбуждения излучения атомарного аргона в конденсирующихся сверхзвуковых потоках его смесей с метаном и моносиланом, активируемых электронным пучком. Выполнено сравнение результатов электронно-пучковой спектроскопии с данными масс-спектрометрических измерений. В узком диапазоне параметров, соответствующих начальному этапу конденсации, зафиксировано аномальное возрастание интенсивности излучения отдельных линий атомарного аргона, затухающее на стадии формирования больших кластеров. Обсуждаются возможные механизмы возбуждения аргона. Установлено, что при электронно-пучковой активации конденсирующихся потоков смесей аргона с малыми добавками молекулярных газов запускается высокоэффективный ионно-кластерный механизм селективного возбуждения отдельных уровней атома аргона. Определены основные каналы передачи возбуждения. Предложена полуэмпирическая модель процесса возбуждения. Для смесей Ar + SiH<sub>4</sub> и Ar + CH<sub>4</sub> выполнено сравнение расчетных и экспериментальных данных, обнаружено хорошее совпадение результатов.

### Введение

Впервые явление аномального возрастания интенсивности излучения отдельных линий атома аргона при активации быстрыми электронами было обнаружено в [1] в смеси аргон – моносилан. Авторы связали зарегистрированный эффект с процессом конденсации в сверхзвуковом потоке. Однако из-за ограниченных возможностей вакуумной откачной системы, использованной в [1], исследованный диапазон изменения плотности при стационарном истечении позволил определить только нижнюю границу эффекта для указанной смеси. Остался открытым вопрос о механизме участия кластеров в процессе селективного возбуждения уровней атомарного аргона и возможности реализации эффекта с другими молекулярными присадками. Применение в настоящей работе импульсной техники формирования потоков, значительно повышающей динамический диапазон реализуемых расходов газовых смесей [2], обеспечило возможность более детального изучения механизмов обнаруженного эффекта, а совмещение в измерениях методов электронно-пучковой спектроскопии и молекулярно-пучковой масс-спектрометрии - исследовать особенности эффекта в различных газовых смесях.

#### Результаты

Эксперименты выполнены на комплексе стендов ЛЭМПУС Новосибирского государственного университета [3], оснащенном импульсными газодинамическими источниками, электронно- и молекулярно-пучковой масс-спектрометрической диагностиками.

Спектры излучения, возбуждаемого электронным пучком в импульсных струях чистого аргона и смесей Ar + 5 % He, Ar + + 5 % CH<sub>4</sub>, Ar + 5 % SiH<sub>4</sub> и Ar + 5 % CH<sub>4</sub> + + 5 % SiH<sub>4</sub> изучались в диапазоне давлений торможения  $P_0 = 0 \div 1500$  kPa при температуре торможения  $T_0 = 300$  К. Зависимости от давления торможения интенсивностей излучения линий атомарного аргона сравнивались с аналогичной зависимостью интенсивности линии  $\lambda = 461,0$  nm однократно ионизованного аргона, выбранной в качестве репера вследствие высокой начальной интенсивности и линейной зависимости от давления торможения. В результате сравнения было установлено, что нелинейный эффект наблюдается на нескольких линиях в диапазоне 540-580 nm (зеленая часть спектра). Одной из наиболее интенсивных является линия атома аргона с длиной волны  $\lambda = 549,6$  nm, которая использовалась авто-

<sup>&</sup>lt;sup>\*</sup> Работа финансировалась частично Программой Министерства образования и науки РФ по поддержке уникальных научно-исследовательских и экспериментальных установок национальной значимости (код проекта 06-05).

рами работы [1]. В дальнейших измерениях мы использовали именно эту линию.

Результаты измерений, в том числе проведенные ранее [4; 5], показали, что интенсивность линий иона аргона для всех исследованных смесей с ростом Р<sub>0</sub> возрастает линейно. Поведение интенсивностей излучения атома аргона ( $\lambda = 549,6$  nm) зависит от рода примеси. В струе чистого аргона, а также при разбавлении его гелием, особенностей в поведении интенсивностей излучения атома аргона не наблюдается. Напротив, в потоках смесей аргона с метаном, моносиланом, а также в тройной смеси после небольшого участка линейного роста интенсивность излучения атома аргона резко возрастает, а при дальнейшем увеличении давления возвращается на линейную аппроксимацию начального участка кривой. Диапазон давлений торможения, в котором наблюдается это отклонение, зависит от состава смеси.

Границы аномального возрастания интенсивности излучения атомарного аргона отчетливо видны на рис. 1. Здесь нанесены значения интенсивности линий атома аргона  $(\lambda = 549,6 \text{ nm})$  в разных смесях, нормированные на линейную аппроксимацию начальных участков этих зависимостей, при изменении давления торможения. Такая нормировка, кроме определения границ существования эффекта, позволила сравнивать вклады в возбуждение атома аргона от вторичного процесса, приводящего к аномальному росту интенсивности, и от возбуждения прямым электронным ударом, отвечающего за линейный рост интенсивности излучения. Многократный рост интенсивности излучения по сравнению с линейной аппроксимацией свидетельствует о том, что в процессе задействован высокоэффективный канал столкновительного возбуждения, связанный с аномально большим сечением энергообмена.

Из сравнения двух бинарных смесей, Ar + + CH<sub>4</sub> (значки 1) и Ar + SiH<sub>4</sub> (значки 2) видно, что аномальное возрастание интенсивности излучения атомарного аргона в смеси аргона с метаном заканчивается при существенно больших давлениях торможения, чем в аргон-моносилановой смеси, причем в смеси аргона с моносиланом этот эффект больше.

Совместное влияние двух сортов примеси на излучение атомарного аргона демонстрирует зависимость для смеси Ar + CH<sub>4</sub> + + SiH<sub>4</sub> (значки 3). Начальный участок (малые  $P_0$ ) аномального возбуждения атома аргона в тройной смеси совпадает с графиком для струи аргона с метаном, а заканчивается процесс при тех же давлениях торможения, что и в смеси аргон – моносилан. При этом величина эффекта в тройной смеси меньше, чем в каждой из бинарных.

Максимумы на этих зависимостях также расположены при различных давлениях торможения: в бинарной смеси с моносиланом ярко выраженный максимум наблюдается раньше, чем в смеси с метаном. Что касается тройной смеси, то здесь максимум достигается при наименьших  $P_0$  из представленного набора смесей. Заметное отклонение поведения этой зависимости от графика для аргон-метановой смеси наблюдается при тех же давлениях торможения, при которых сильнее всего проявляется аномальное поведение интенсивности атома аргона в бинарной смеси с моносиланом.

Важной характеристикой эффекта является его большая продолжительность, т. е. время между возбуждением газового потока электронным пучком и излучательной дезактивацией частиц. В используемых смесях в режимах истечения, соответствующих максимальному проявлению эффекта, интенсивное свечение зеленого цвета наблюдалось не только в струе ниже области активации электронным пучком, но и в газе около стенок вакуумной камеры. Наиболее ярко этот эффект проявлялся в смеси Ar + SiH<sub>4</sub>. Учитывая, что предельная скорость истечения аргона составляет ~ 450 m/s, а яркое зеленое свечение наблюдалось на длине струи порядка 0,5 м, можно утверждать, что время, в течение которого наблюдается свечение на некоторых длинах волн атомарного аргона, превышает 1 ms, что значительно больше радиационного времени жизни этих же состояний.



*Рис.* 1. Нормированные интенсивности излучения атома аргона

Большая продолжительность высвечивания атома аргона при аномальном возбуждении позволяет утверждать, что зарегистрированный эффект обеспечивает на несколько порядков большую скорость возбуждения излучающих состояний атома аргона по сравнению с прямым ударом электронами пучка. Дело в том, что на рис. 1 сравниваются интенсивности излучения из узкой (около 1 mm) зоны наблюдения оптической системы, ориентированной поперек струи. Время жизни уровней атомов аргона, возбужденных прямым электронным ударом, составляет единицы микросекунд, поэтому все они дезактивируются в пределах этой узкой зоны, т. е. при возбуждении прямым электронным ударом мы измеряем оптический сигнал, пропорциональный полной интенсивности излучения аргона на выбранной длине волны. Излучение тех же атомов, но обусловленное обнаруженным вторичным процессом, наблюдается в гораздо большей области пространства. Зона наблюдения оптической системы регистрации составляет менее 2 % от протяженности этой области, следовательно, мы регистрируем только малую часть полной интенсивности излучения при аномальном возбуждении, и эта малая часть в несколько раз больше полной интенсивности излучения за счет прямого электронного удара. Учитывая, что источником энергии является пучок активирующих электронов, можно уверенно утверждать, что в условиях аномального эффекта эффективность энергообмена возрастает на несколько порядков.

Установлено также, что явление аномального возбуждения атома аргона наблюдается, во-первых, в смеси с конденсирующейся молекулярной добавкой и, во-вторых, при плотностях и температурах в струе, соответствующих условиям конденсации. Для выявления корреляций между кластерообразованием и энергообменом были выполнены измерения интенсивностей мономерных и кластерных компонент методом молекулярно-пучковой масс-спектрометрии в струях смесей аргона с метаном и моносиланом в широком интервале давлений торможения. Результаты этих измерений приведены на рис. 2 для чистого аргона (сплошная линия 1), смесей аргона с моносиланом (черные значки 2, 3), метаном (белые значки 4, 5) и для тройной аргон-метан-моносилановой смеси (серые значки 6, 7, 8). Чтобы не перегружать рисунок, приведены только данные по изменению мономерных компонент смесей в зависимости от параметра подобия  $P_0^* d^{0.8}$ , используемого в режимах с конденсацией. Здесь же пунктирными линиями нанесены данные по среднему размеру кластеров в струе чистого аргона (значки 12, 13), приведенные в работах [6; 7]. Результаты оптических измерений в нормировке, использованной на рис. 1, показаны для трех смесей ромбами 9, 10, 11 в нижней части рис. 2.

Изменение зависимостей интенсивностей массовых пиков от давления торможения традиционно для молекулярно-пучковых измерений в сверхзвуковых конденсирующихся потоках. Отклонение от линейного роста интенсивности сигналов мономеров является границей кластерообразования. С увеличением давления торможения средний размер кластеров растет (кривые 12, 13). При этом наблюдается уменьшение плотности газа на оси струи, вызванное, во-первых, уходом части мономеров в кластеры и, во-вторых, выделением тепла конденсации. Вследствие этого интенсивности сигналов мономеров в молекулярном пучке падают.

При дальнейшем росте  $P_0$  сигнал на массах мономеров снова начинает возрастать. Это объясняется, по-видимому, тем, что мономеры, регистрируемые при высоких значениях Р<sub>0</sub>, появляются при испарении больших кластеров в датчике масс-спектрометра [2]. Нетрудно заметить, что аномальный рост интенсивности излучения в потоках смесей, активируемых электронно-пучковой плазмой (значки 9, 10, 11), начинается при тех же параметрах, что и конденсация. Первыми начинают интенсивно излучать метаносодержащие смеси (бинарная и тройная), чуть позднее эффект проявляется в аргонсилановой смеси. Заметим, что начало эффекта в смесях обнаруживается несколько раньше, чем начало конденсации в потоках чистого аргона без электронно-пучковой активации (кривая 12).

Конденсация аргона в аргон-метановой смеси протекает практически так же, как и в чистом аргоне. Это может означать, что метан начинает конденсироваться позже, чем аргон, т. е. в условиях, когда в потоке уже существуют аргоновые кластеры. В смеси аргон – моносилан, напротив, конденсация примеси задерживает конденсацию газа-носителя до тех пор, пока практически вся примесь не окажется в связанном состоянии. Затем при еще больших давлениях начинается интенсивная конденсация аргона, при этом образуются смешанные арМадирбаев В. Ж., Зарвин А. Е. Ионно-кластерное возбуждение уровней атомарного арто 4 на 100000 г

гон-силановые комплексы [8]. В тройной смеси, по-видимому, протекает совместная конденсация всех трех компонент смеси с образованием смешанных аргон-кремнийорганических комплексов. Интенсивности излучения аргона при этих давлениях в разных смесях также ведут себя по-разному. В обеих силаносодержащих смесях эффект аномального роста интенсивности излучения заканчивается синхронно с началом стадии образования больших кластеров в потоках. В аргон-метановой смеси эффект наблюдается и на стадии формирования больших кластеров.

## Дискуссия

Из анализа экспериментальных данных, полученных в электронно-пучковых и массспектрометрических измерениях, следует, что:

– в некотором диапазоне  $P_0$ , ограниченном сверху и снизу, при увеличении давления торможения  $P_0$  наблюдается отход от линейного и аномальный рост интенсивности излучения отдельных линий атомарного аргона при электронно-пучковой активации струи смеси;

 этот эффект наблюдается в исследованных нами смесях аргона с молекулярными добавками и не наблюдается в чистом аргоне, а также в смеси аргона с гелием;

 в изученном диапазоне параметров торможения график зависимости интенсивности излучения линий иона аргона от тока пучка электронов линеен и не имеет особенностей;

 возбуждение уровней атома аргона селективно: аномальный эффект наблюдается на линиях, соответствующих переходам с нескольких близко расположенных по энергии уровней атомарного аргона;

 начало эффекта коррелирует с началом конденсации в потоке;

– сравнение в смеси Ar + SiH<sub>4</sub> результатов молекулярно-пучковых и спектральных измерений настоящей работы, а также спектральных данных работы [1] показывает, что в смеси верхняя по  $P_0$  граница эффекта коррелирует с появлением в потоке больших кластеров и падением оптического сигнала осколков примеси (Si, SiH, CH и H<sub> $\alpha$ </sub>);

– в процессе участвуют долгоживущие (свыше 1 ms) возбужденные состояния, в



*Рис.* 2. Сравнение результатов оптических и масс-спектрометрических измерений

результате чего в условиях проявления аномального возбуждения атомарного аргона струя смеси высвечивается по всей длине;

процесс характеризуется высокой эффективностью; даже в узкой области активации, определяемой диаметром электронного пучка, интенсивность излучения вследствие вторичного аномального эффекта превышает интенсивность свечения вследствие прямого электронного удара в несколько раз, а с учетом размеров области, занимаемой свечением – в десятки раз.

Следовательно, процесс аномального возбуждения происходит на определенной стадии кластерообразования в потоке, в смеси конденсирующихся газов, при обязательном участии молекулы примеси и смешанного кластера, состоящего из атомов аргона и молекул примеси. Предположение об участии именно смешанного кластера сделано на основании того, что аномальный эффект наблюдается в смесях аргона с малой примесью как метана, так и моносилана, хотя процессы кластерообразования в этих смесях отличаются [9]. В смеси Ar-SiH<sub>4</sub> первой начинает конденсироваться примесь, при этом выделение тепла конденсации препятствует кластерообразованию аргона, а в смеси Ar-CH<sub>4</sub>, напротив, кластерообразование протекает так же, как и в чистом аргоне вплоть до давлений торможения, при которых уже формируются большие частицы.

Проанализируем возможные реакции, линейные по току электронов, приводящие к появлению возбужденных атомов аргона ([Х] – молекула примеси):

 $Ar + e \rightarrow Ar^*$  – возбуждение аргона прямым ударом электронов пучка. Процесс реально наблюдается и обеспечивает линейную зависимость интенсивности излучения от давления торможения вне границ проявления аномального эффекта;

 $\begin{array}{l} Ar_{m}+e \rightarrow Ar_{m-1}+Ar^{*}, \\ Ar_{m}+e \rightarrow Ar_{m}^{*}, Ar_{m}^{*} \rightarrow Ar_{m-1}+Ar^{*} u \\ Ar_{m}+e \rightarrow Ar_{m}^{*}, Ar_{m}^{*}+Ar \rightarrow Ar_{m}+Ar^{*} \end{array}$ (m = 1, 2, ...) – возбуждение при активации аргоновых кластеров. Процессы маловероятны, так как в потоке чистого аргона и его смеси с гелием аномальное возрастание интенсивности свечения не наблюдается;

 $\operatorname{Ar}_{n}[X]_{m} + e \rightarrow (\operatorname{Ar}_{n}[X]_{m})^{*} \rightarrow \operatorname{Ar}^{*}\operatorname{Ar}_{n-1}[X]_{m}$ (п = 1, 2, ...) – возбуждение смешанного кластера с последующей передачей энергии атому аргона. Процесс маловероятен, поскольку количество возбужденных атомов аргона, получаемых в результате, пропорционально концентрации кластеров. Поэтому он может обеспечить ниспадающую часть графика для нормированной интенсивности при возрастании давления торможения только в случае уменьшения числа смешанных кластеров в условиях развитой конденсации, что не подтверждается результатами наших исследований;

 $[X] + e \rightarrow [X]^*, [X]^* + Ar \rightarrow Ar^* + [X]$ двухстадийный процесс возбуждения с передачей энергии от возбужденной молекулы примеси к атому аргона. Скорость возбуждения аргона в этом процессе пропорциональна концентрациям аргона и молекул примеси. В принципе его протекание возможно, однако малые времена жизни возбужденных состояний аргона и примеси, участвующих в процессе, а также разница энергий уровней аргона и примеси позволяют вкладом этого механизма пренебречь;

 $\operatorname{Ar}_{n}[X]_{m} + e \rightarrow (\operatorname{Ar}_{n}[X]_{m})^{*}, (\operatorname{Ar}_{n}[X]_{m})^{*} + \operatorname{Ar}$  $\rightarrow$  Ar<sup>\*</sup> + Ar<sub>n</sub>[X]<sub>m</sub> – также двухстадийный процесс с передачей энергии от возбужденного кластера к атому аргона. Процесс возможен, но скорость возбуждения аргона пропорциональна концентрации кластеров, что не позволяет обеспечить ниспадающую часть графика для нормированной интенсивности при возрастании  $P_0$ ;

 $\begin{array}{rcl} Ar &+ & e &\rightarrow & Ar^{*}, & Ar & &^{*} &+ & Ar_{n}[X]_{m} \rightarrow \\ \rightarrow & (Ar_{n+1}[X]_{m})^{*}, & (Ar_{n+1}[X]_{m})^{*} \rightarrow & Ar^{*}Ar_{n} & [X]_{m} - \end{array}$ 

трехстадийный процесс, при котором энергия передается в смешанный кластер через посредничество возбужденного электронным ударом атома аргона с последующим возбуждением за счет внутрикластерного энергообмена отдельных уровней энергии связанных в кластере атомов аргона, и дальнейшим испусканием фотона. Процесс возможен, но скорость возбуждения аргона пропорциональна его концентрации, что также не позволяет обеспечить ниспадающую часть графика для нормированной интенсивности при возрастании  $P_0$ ;

 $Ar + e \rightarrow Ar^*, Ar^* + [X]_n \rightarrow (Ar[X]_{n'})^*,$  $(Ar[X]_{n'})^* \rightarrow Ar^* [X]_{n'}$  – трехстадийный процесс, при котором энергия передается в кластер примеси через посредничество возбужденного электронным ударом атома аргона с последующим испусканием фотона. Процесс возможен, но наличие в конденсирующейся смеси сколько-нибудь значительного количества чистых кластеров примеси, особенно на стадии формирования больших кластеров, представляется маловероятным.

Таким образом, значительное участие приведенных выше механизмов в процессе аномального возбуждения отдельных уровней атомов аргона маловероятно. Поэтому наиболее вероятным является взаимодействие кластеров с возбужденными и, возможно, ионизованными молекулами примеси. Передача возбуждения в этом процессе происходит, скорее всего, в следующей последовательности:

 $[X] + e \rightarrow [X]^*$  – молекула примеси возбуждается и, возможно, ионизируется электронным ударом. Предположение о возможной ионизации обусловлено тем, что величина эффекта требует для объяснения больших значений сечения взаимодействия;

 $[X]^* + Ar_n[X]_m \rightarrow (Ar_n[X]_{m+1})^* - молеку$ ла примеси, взаимодействуя с кластером, передает энергию кластеру и, по-видимому, присоединяется к нему. В пользу последнего предположения говорит тот факт, что изучаемое явление протекает на фоне обеднения газовой смеси молекулами примеси, а также длительность послесвечения (большое время жизни возбужденных состояний);

 $(Ar_{n'}[X]_{m+1})^* \rightarrow Ar^*Ar_{n'-1}[X]_{m+1} - 3a$  счет внутрикластерного энергообмена возбуждаются отдельные уровни энергии аргона, после чего происходит испускание фотона, возможно, с эжекцией возбужденного атомарного аргона из кластера.

Тогда отношение вкладов в интенсивность излучения аргона за счет аномального возбуждения  $I_{anom}$  и прямого электронного удара  $I_{prim}$  может быть записано в следующем виде:

$$\begin{split} I_{anom} / \ I_{prim} &\sim (n_X / n_{Ar})^* (\sigma_{X-e} / \sigma_{Ar-e}) \times \\ &\times (\tau_{X^*} / \tau_{Ar^*})^* n_{cl}^* v_{X^*-cl}^* \sigma_{X^*-cl}, \end{split}$$

где ( $n_X / n_{Ar}$ ) – отношение концентраций молекулы примеси и атома аргона в области активации, ( $\sigma_{X-e} / \sigma_{Ar-e}$ ) – отношение сечений возбуждения молекул примеси и атома аргона электронами, ( $\tau_{X^*} / \tau_{Ar^*}$ ) – отношение оптических времен жизни возбужденных состояний молекулы и атома,  $n_{cl}$  – концентрация кластеров в зоне активации,  $v_{X^*-cl}$  – средняя относительная скорость молекулы примеси и кластера,  $\sigma_{X^*-cl}$  – сечение взаимодействия возбужденной молекулы примеси с кластером.

По предложенной модели были проведены расчеты зависимости относительной интенсивности излучения атома аргона от давления торможения для смесей аргон – метан и аргон – моносилан. Полная интенсивность излучения  $I = I_{anom} + I_{prim}$  может быть представлена в виде

$$I / I_{prim} = 1 + A * n_X * n_{cl} / n_{Ar}$$

где параметр А содержит в себе постоянные или слабо изменяющиеся величины: сечения, времена жизни и относительные скорости участников процесса.

Концентрация молекул примеси  $n_X$  при различных  $P_0$  оценивалась по результатам спектральных измерений, концентрация атомов аргона  $n_{Ar}$  – по результатам массспектрометрических измерений, концентрация кластеров  $n_{cl}$  грубо оценивалась по величине падения сигнала мономеров аргона и зависимостям среднего размера кластеров чистого аргона от давления, приведенным в работах [6; 7] и показанным на рис. 2. Результаты расчета для смеси аргона с метаном приведены на рис. 3.

Здесь нанесены амплитуды пиков мономеров аргона и метана (значки 1 и 2), полученные с помощью масс-спектрометрии, и интенсивность излучения атомарного аргона в этой смеси, нормированная так же, как на рис. 1 (значки 3). Концентрация примеси оценивалась по интенсивности излучения радикала СН. Результаты расчета нанесены сплошной линией 4. Расчет качественно описывает изменение экспериментальных данных на начальном участке проявления аномального эффекта, наблюдается хорошее совпадение по положению максимума.

Однако в области высоких давлений расчет дает несколько завышенные значения. Это может быть связано с отсутствием достоверных данных по среднему размеру и концентрации кластеров в исследуемых смесях, так как используемые нами данные были получены в потоке чистого аргона.

Результаты моделирования для смеси аргона с моносиланом показаны на рис. 4. Здесь расчет (сплошная кривая 4) также хорошо совпадает с экспериментом (значки 3) по положению максимума эффекта, однако количественное совпадение хуже. Как показано на рис. 2, примесь моносилана в аргоне сильно изменяет ход конденсации в потоке.

Добавление в аргон моносилана приводит к сдвигу начала конденсации в область меньших значений  $P_0 d^{0,8}$ . Первыми в потоке появляются малые кластеры моносилана, которые и являются зародышами конденсации. Кластерообразование моносилана препятствует конденсации аргона, в результате в потоке на начальном этапе кластерообразования отсутствуют тримеры и более тяжелые кластеры аргона. По-видимому, в отличие от моносилана примесь метана не влияет на начальную стадию конденсации аргона. Заметим также, что изменение зависимости мономеров метана в области невысоких давлений подобно зависимости для мономеров аргона. В результате использование в расчетах данных для чистого аргона более достоверно для



*с. 3.* Результаты расчета для смеси аргона с метаном

смеси аргона с метаном, тогда как в аргонмоносилановой смеси дает существенную погрешность.

Для тройной смеси аргон – метан – моносилан нереально дать даже приближенную оценку концентраций различных компонентов без специальных измерений, выполнить которые в настоящей работе не представлялось возможным. Поэтому сравнение экспериментальных данных по тройной смеси с нашей моделью представляется некорректным и в настоящей работе не предпринималось.

С учетом указанных обстоятельств - отсутствием данных по среднему размеру и концентрации кластеров в сверхзвуковых струях смесей аргона с молекулярными добавками - можно, тем не менее, считать наблюдаемое совпадение результатов расчета и эксперимента хорошим. Такое совпадение подтверждает справедливость предположений, заложенных в основание предлагаемой модели многостадийного молекулярнокластерного процесса возбуждения аргона в конденсирующемся потоке смеси, активируемой пучком электронов и может послужить основой для дальнейшего описания механизмов наблюдаемого процесса.

#### Выводы

Исследован эффект высокоэффективного селективного возбуждения уровней атомарного аргона при активации пучком электронов струи смеси аргона с метаном и моносиланом. Определены корреляции между



*Рис.* 4. Результаты расчета для смеси аргона с моносиланом

процессами аномальной накачки и стадиями конденсации в потоке.

Показано, что наблюдаемый эффект нелинейного возрастания интенсивности излучения атома аргона в активируемых смесях ограничен стадией формирования смешанных комплексов, состоящих из газаносителя и молекулярных добавок.

Рассмотрена возможность каскадного механизма энергообмена в потоках смесей, приводящего к возникновению долгоживущих возбужденных состояний смешанных кластеров в активируемом электронами конденсирующемся потоке.

Выполнено сравнение экспериментальных данных и результатов расчета по предложенной модели ионно-кластерного взаимодействия в сверхзвуковых струях аргона с малыми добавками метана и моносилана при электронно-пучковой активации.

#### Список литературы

1. *Khmel S. Ya., Sharafutdinov R. G.* The effect of condensation on optical emissions of Ar – SiH4 free jet, activated by electron beam plasma // Abstracts of invited lectures and contributed papers of 15th ESCAMPIG. Hungary, 2000. Vol. 24A. P. 384–385.

2. Зарвин А. Е., Коробейщиков Н. Г., Мадирбаев В. Ж. и др. Метод исследования кластерообразования в импульсной свободной струе // ПТЭ. 2005. № 6. С. 125–133.

3. Зарвин А. Е., Коробейщиков Н. Г., Мадирбаев В. Ж. и др. Универсальная малогабаритная вакуумная установка для газокинетических исследований // ПТЭ. 2000. № 5. С. 64–70.

4. Мадирбаев В. Ж., Зарвин А. Е., Коробейщиков Н. Г. и др. Аномальное возбуждение аргона в импульсных сверхзвуковых потоках смесей Ar + CH<sub>4</sub>, Ar + SiH<sub>4</sub> и Ar + CH<sub>4</sub> + SiH<sub>4</sub>, активируемых электронным пучком // Письма в ЖТФ. 2001. Т. 27, № 19. С. 39–43.

5. Мадирбаев В. Ж., Зарвин А. Е., Коробейщиков Н. Г. и др. О протекании ионнокластерных реакций, инициируемых электронным пучком в смесях аргона с метаном и моносиланом // ФТТ. 2002. Т. 44, вып. 3. С. 492–494.

6. *Buck U., Krohne R.* Cluster size determination from diffractive He atom scattering // J. Chem. Phys. 1996. Vol. 105. P. 5408–5415.

7. Karnbach R., Joppien M., Stapelfeldt J. et al. CLULU – An experimental setup for luminescence measurements on Van-der-Waals clusters with synchrotron radiation // Rev. Sci. Instrum. 1993. Vol. 64. P. 2838–2842.

8. Шарафутдинов Р. Г., Зарвин А. Е., Коробейщиков Н. Г. и др. Кластеры в импульсной свободной струе смеси моносилан-аргон // Письма в ЖТФ. 1999. Т. 25, вып. 21. С. 47–51.

9. Zarvin A. E., Madirbaev V. Gh., Korobeishchikov N. G. et al. Formation of mixed clusters in pulse jets of monosilane and methane mixtures with an inert gas // 5<sup>th</sup> Biennial Int. Workshop «Fullerenes and atomic clusters». July 2–6, 2001. Abstracts. St. Petersburg, Russia, 2001. P. 214.

Материал поступил в редколлегию 22.12.2006