

**Н. Г. Коробейщиков, А. Е. Зарвин, В. В. Каляда, М. Д. Ходаков**

Новосибирский государственный университет  
ул. Пирогова, 2, Новосибирск, 630090, Россия

E-mail: korobei@ci.nsu.ru

## **ФОРМИРОВАНИЕ ИНТЕНСИВНЫХ КЛАСТЕРНЫХ ПУЧКОВ АРГОНА ДЛЯ ТЕХНОЛОГИЧЕСКИХ ПРОЦЕССОВ**

Произведена модернизация экспериментального комплекса ЛЭМПУС-1. Выполнены экспериментальные исследования формирования кластерных пучков аргона для создания технологического процесса ионно-кластерной модификации материалов. Получены кластерные пучки с интенсивностью до  $5 \cdot 10^{14}$  кластеров/см<sup>2</sup> · с при среднем размере кластеров 1 300. Найдены оптимальные условия формирования кластерного молекулярного пучка.

*Ключевые слова:* сверхзвуковая струя, конденсация, молекулярный пучок, кластеры, ионизация.

Ускоренные пучки атомарных или молекулярных ионов в настоящее время фактически стали неотъемлемой частью многих современных технологий [1; 2]. Традиционные ионно-пучковые процессы основаны на индивидуальных столкновениях (или каскаде парных столкновений) налетающих ионов с приповерхностными атомами. Совершенно другая ситуация возникает при взаимодействии больших кластеров (комплексов, состоящих из сотен или тысяч частиц) с поверхностью. В этом случае происходит практически одновременное взаимодействие большого количества частиц кластера с примерно таким же количеством атомов твердого тела. Это приводит к сильным нелинейным эффектам, которые коренным образом отличаются от случая бинарных столкновений ионов-мономеров [2]. Недавно было показано, что ускоренные пучки газовых кластерных ионов обладают рядом уникальных преимуществ, позволяющих считать их перспективной основой для новых технологий, в том числе технологий нанoeлектроники [3; 4].

В работах коллектива под руководством проф. Ямады [5–6] установлено, что для модификации поверхности необходимы интенсивные потоки кластеров размером до тысячи единиц с энергией до 30–40 кэВ. Наиболее перспективным способом дости-

жения таких параметров является формирование молекулярного пучка из сверхзвуковой газовой струи с последующей его ионизацией и ускорением. Подбирая геометрию сопла и варьируя исходные параметры газа (давление и температуру торможения) можно сформировать сверхзвуковой пучок кластеров требуемых размеров. Таким образом, получение нейтрального кластерного пучка высокой интенсивности является необходимым условием для последующего формирования ускоренного ионно-кластерного потока.

В настоящей работе представлены экспериментальные результаты формирования интенсивных кластерных пучков из сверхзвуковых струй Ar. Работа выполнена на газодинамическом комплексе ЛЭМПУС-1 Новосибирского государственного университета [7; 8]. Нами произведена модернизация экспериментального оборудования комплекса. Принципиальная схема установки осталась прежней: базовая большая камера расширения с размещенным в ней газовым источником и присоединяемые к ней через фланцы и затворы специализированные секции (рис. 1). Нами полностью заменена система вакуумной откачки базовой камеры расширения. Вместо бустерных паромасляных насосов НВБМ-0,5 с форвакуумными насосами НВПР-16 установлены

бустерный турбомолекулярный насос TMP-2203LMC на магнитном подвесе фирмы «Shimadzu» с производительностью 2 000 л/с в диапазоне давлений от  $10^{-1}$  до  $10^{-7}$  Па и гелиевый криогенный насос Cryo Torr 8 фирмы «Helix Technology» с производительностью 1 500 л/с. Соответственно изменена и система форвакуумной откачки этой камеры: установлены безмасляные форвакуумные насосы MU-100 фирмы «Kashiyama» и ISP-500 фирмы «Anest Iwata», обеспечивающие необходимый форвакуум для высоковакуумных насосов. Заменена также на безмасляную система байпасной откачки стенда (форвакуумный насос ISP-250 фирмы «Anest Iwata»).

Таким образом, обеспечена полностью безмасляная вакуумная система камеры расширения стенда, позволяющая существенно расширить диапазон изучаемых газовых объектов. Координатное устройство стенда для соплового блока с форкамерой заменено на новое, фирмы «Micos», что обеспечило возможность перемещения газового источника внутри камеры расширения

по трем координатным осям на 250 мм (вдоль оси струи, ось  $X$ ), на 60 мм (в перпендикулярной к оси  $X$  плоскости, оси  $Y$  и  $Z$ ).

Перемещение обеспечивается шаговыми двигателями VT-80-2SM и позволяет устанавливать координаты с точностью до 5 мкм. Используются новые системы контроля вакуума, подачи исследуемых газов и газовых смесей: вакуумметры 356 Micro-Ion Plus, 275 Mini-Convectron фирмы «Granville-Phillips», регуляторы давления 0–3 МПа и расхода газов 0–200 станд. см<sup>3</sup> фирмы «Alicat Scientific». Импульсные режимы работы газового источника позволяют достигать больших мгновенных расходов рабочих газов (до 10 г/с при частоте импульсов до 100 Гц).

Изготовлен и установлен новый генератор молекулярного пучка. Традиционные послескиммерная и детекторная секции с фланцами в стандарте ISO и CF соответственно оснащены высоковакуумными турбомолекулярными насосами фирмы «Shimadzu»: TMP-1003LM на послескиммерной и TMP-303LM на детекторной секции.

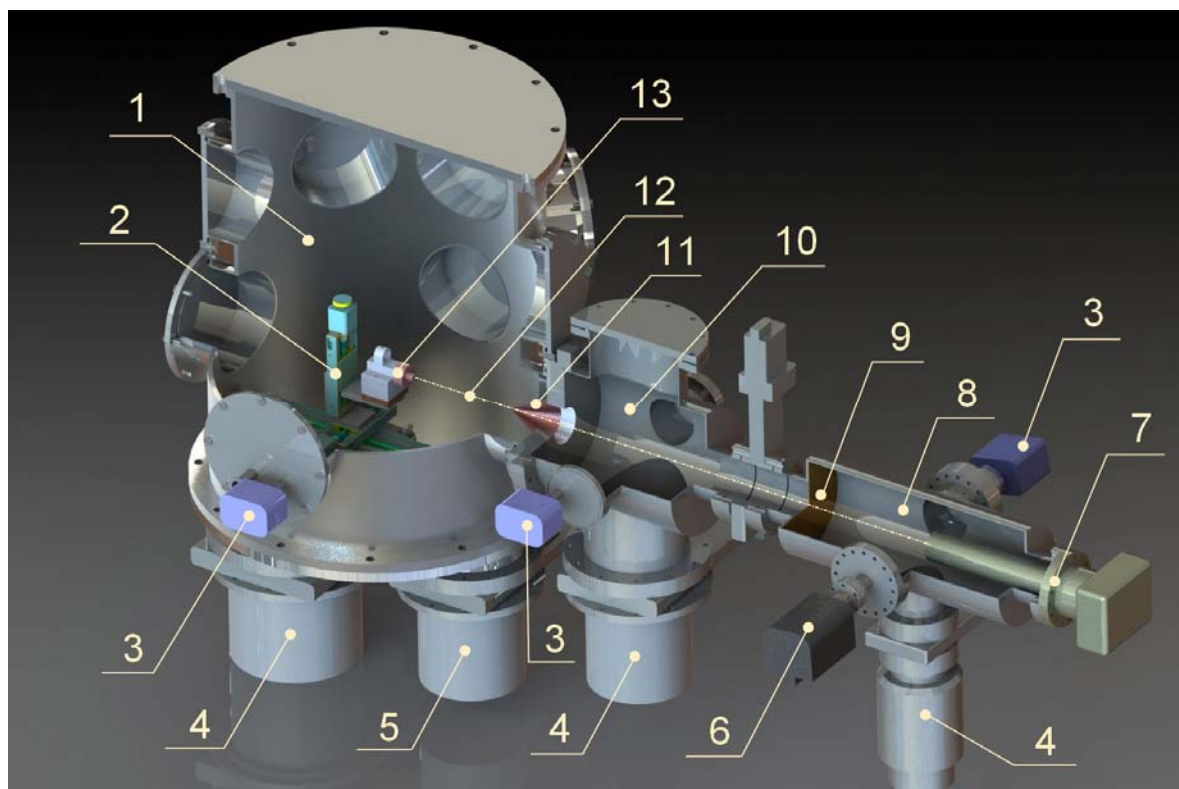


Рис. 1. Принципиальная схема стенда ЛЭМПУС: 1 – камера расширения; 2 – трехкомпонентное координатное устройство; 3 – вакуумметры; 4 – турбомолекулярные насосы; 5 – криогенный насос; 6 – гетероионный насос; 7 – масс-спектрометр; 8 – детекторная секция; 9 – коллимирующая диафрагма; 10 – послескиммерная секция; 11 – скиммер; 12 – ось  $X$  сопло-скиммер-коллиматор-детектор; 13 – форкамера с соплом

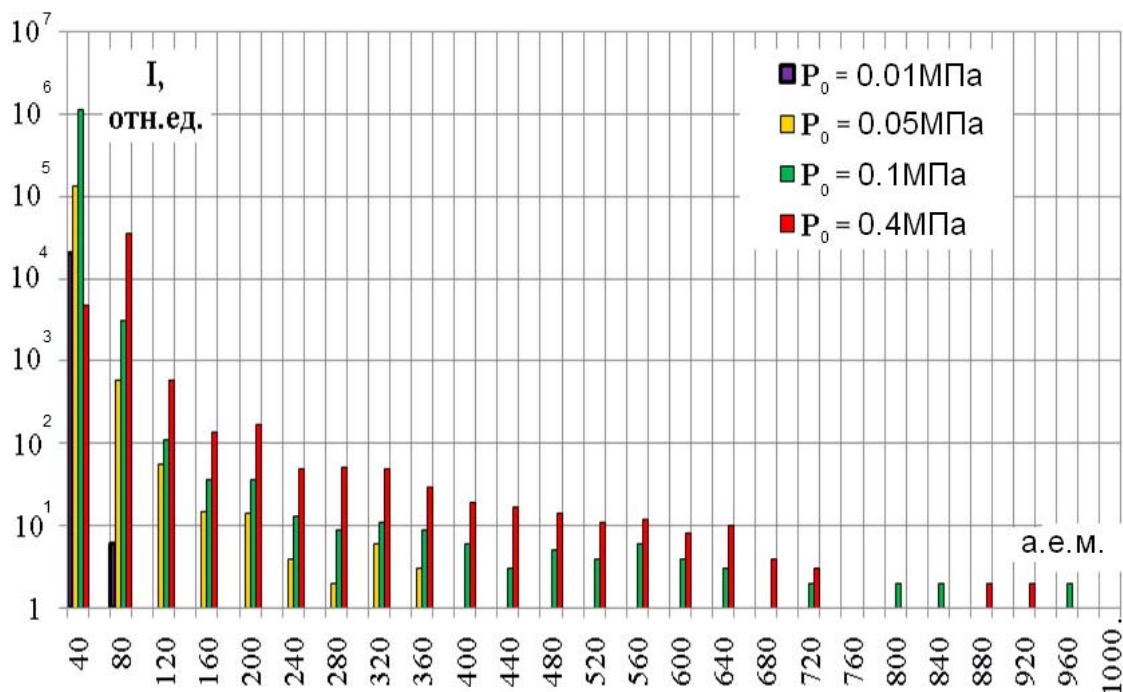


Рис. 2. Пример зарегистрированного масс-спектра аргона в сверхзвуковом потоке с кластерами

Вакуумная откачная система послескиммерной секции дополнительно усилена гелиевым криогенным насосом Cryo Torr 8 фирмы «Helix Technology». Это обеспечило достижение в секциях молекулярно-пучковой системы глубокого безмасляного вакуума. Установка сверхвысоковакуумного затвора между секциями, а также над турбомолекулярным насосом, установка дополнительного гетероионного насоса PS-100 фирмы «Thermionics», работающего в непрерывном режиме, позволили достигать в рабочем режиме детекторной секции разрежения на уровне  $1 \cdot 10^{-6}$  Па. В качестве детектора молекулярного пучка использованы квадрупольные масс-спектрометры Hiden Analytical EPIC 1000 фирмы «Hiden» с диапазоном диагностируемых масс от 1 до 1 000 а.е.м. и XT-300 фирмы «ExTopt» с диапазоном диагностируемых масс от 1 до 300 а.е.м. Пример зарегистрированного с помощью указанной аппаратуры масс-спектра малых аргоновых кластеров в сверхзвуковом молекулярном пучке приведен на рис. 2.

Изменению подверглось также электронно-пучковое оборудование стенда. Мощный дуговой разряд при импульсном истечении

газа обеспечивается разработанной нами импульсной разрядной системой с энергией до 150 Дж в импульсе. Кроме традиционной электронной пушки на базе хорошо известной электронной оптики ЭОСС-2 (г. Сумы) с накаливаемым катодом из гексаборида лантана используется модифицированный нами источник электронов для формирования электронного пучка с энергиями ниже 1 кэВ (энергия в пучке – от 70 до 500 эВ, ток – до 200 мА). Модуль активации кластеризованных сверхзвуковых струй позволяет активировать непрерывные и импульсные потоки от газового источника, генерировать возбужденные, ионизованные частицы и радикалы. Фотография модернизированного стенда приведена на рис. 3.

Для создания интенсивного ионно-кластерного пучка необходимы кластеры большого размера. Известно, что при одинаковых параметрах торможения (давление торможения  $P_0$ , температура торможения  $T_0$ ) сверхзвуковые сопла позволяют формировать кластеры большего размера по сравнению со звуковыми соплами [9]. Поэтому эксперименты проведены со сверхзвуковым коническим соплом, имеющим диаметр критического сечения  $d^* = 0,19$  мм и полу-



Рис. 3. Общий вид стенда ЛЭМПУС

угол раствора  $\alpha = 6^\circ$ . Молекулярный пучок формировался с помощью скиммера с диаметром входного отверстия  $d_s = 1$  мм, расположенного на достаточном удалении от кромки сопла.

К сожалению, ни один из имеющихся в нашем распоряжении масс-спектрометров не позволяет диагностировать весь необходимый динамический диапазон размеров кластеров. Кроме того, регистрируемые ионы-олигомеры аргона в диапазоне до 1 000 а. е. м. могут быть как реальными малыми кластерами, сформировавшимися в струе и не достигшими больших размеров, так и осколками больших кластеров, распавшихся при электронно-пучковой ионизации в детектирующей системе масс-спектрометра. Поэтому в настоящем исследовании измерения проводились с помощью закрытого ионизационного датчика давления Granville-Philips с диафрагмой на входе, расположенного на оси молекулярного пучка. Поскольку величина давления внутри объема датчика определяется разностью потоков внутрь и наружу через входную апертуру датчика, то показания датчика отражают интенсивность молекулярного пучка, т. е. число частиц, проходящих через единицу площади в единицу времени. Так как кластеры, попадающие внутрь объема датчика, испаряются при столкновениях со стенками, показания датчика соответствуют полной интенсивности кластерного молекулярного пучка, т. е. числу частиц, в нашем случае – атомов аргона, влетевших в датчик

через входную апертуру в виде мономеров и кластеров различного размера.

Для определения оптимальных параметров формирования интенсивного кластерного пучка выполнены измерения полной интенсивности нейтрального молекулярного потока при варьировании давления торможения  $P_0$  и расстояния сопло – скиммер  $x_{ns}$ . На рис. 4 приведены показания датчика давления на оси молекулярного пучка  $P_a$  и фонового давления в послескиммерной секции  $P_{bg}$ , измеренные одновременно двумя датчиками (расположенными на оси молекулярного пучка и вне зоны его влияния соответственно) при фиксированном  $P_0 = 0,5$  МПа на разных расстояниях сопло – скиммер. Здесь и далее расстояние сопло – скиммер измеряется в калибрах (диаметрах критического сечения сопла)  $x/d_*$ , где  $d_*$  – диаметр сопла в критическом (звуковом) сечении. Показания датчиков приведены в Паскалях. Там же стрелкой показано положение границы струи – прямого скачка уплотнения  $x_M$  (диска Маха), рассчитанное по известной эмпирической формуле

$$x_M/d_* = 0,67 \cdot \sqrt{P_0/P_h}, \quad (1)$$

где  $P_h$  – фоновое давление в камере расширения. Очевидно, что остаточный («фоновый») газ в послескиммерной камере вносит вклад в показания датчика интенсивности молекулярного пучка. Поэтому величина сигнала на оси молекулярного пучка,  $P_{mb}$ , определялась как  $P_{mb} = P_a - P_{bg}$ .

Рассмотрим изменения величины  $P_{mb}$  от максимального расстояния сопло – скиммер вверх по потоку, т. е. по мере приближения скиммера к соплу. Естественно, входное сечение скиммера принимается за поверхность последних столкновений частиц струи между собой, поскольку дальнейшее расширение попавших через скиммер в послескиммерную секцию частиц происходит в условиях более глубокого вакуума, зависящего от соотношения между суммарным натеканием газа через скиммер и расходной характеристикой высоковакуумной откачной системы секции.

После прохождения области диска Маха или зоны смыкания боковых скачков уплотнения, в которой сигнал датчика соответственно локально убывает или возрастает, скиммер проникает внутрь так называемой «первой бочки», области свободного расширения сверхзвукового газового потока. Последующий рост сигнала по мере сближения скиммера с соплом связан, с одной стороны, с постепенным выходом из области смешения струи с фоновым газом, т. е. с входением в невозмущенное ядро струи, с другой – с изменением плотности и перпендикулярного скоростного отношения в струе. Следует отметить, что изменением гидродинамической скорости потока в этой области можно пренебречь в пределах погрешности измерений, поскольку ее существенные изменения завершаются еще на начальном этапе истечения, вблизи выходного среза сопла. В этой области, примерно до 200 калибров, влиянием фоновой компоненты  $P_{bg}$  на показания детектора также можно пренебречь.

Дальнейшее приближение скиммера к соплу характеризуется постепенным падением интенсивности полезного сигнала, вызванным снижением перпендикулярного скоростного отношения, ростом рассеяния молекулярного пучка на фоновом газе в послескиммерной камере, а также, при дальнейшем приближении к соплу, скиммерным взаимодействием. Таким образом, для указанных условий молекулярный пучок с максимальной интенсивностью формируется на расстояниях сопло – скиммер 150–200 калибров.

Аналогичные измерения были выполнены при других давлениях торможения. Результат расчета абсолютных значений интенсивности на оси молекулярного пучка

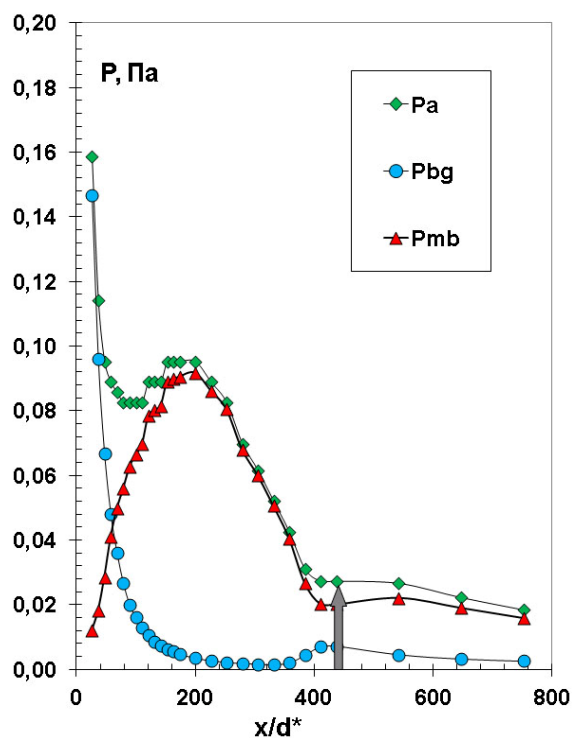


Рис. 4. Зависимости показаний датчика давления на оси молекулярного пучка  $P_a$ , фонового давления  $P_{bg}$  и величины  $P_{mb}$  от расстояния сопло – скиммер при  $P_0 = 0,5$  МПа

для ряда фиксированных значений давления торможения приведен на рис. 5. Оценки выполнены в предположении, что для всех начальных условий истечения скорость потока равна предельной для данной температуры торможения ( $T_0 = 300$  К), а изменением скорости из-за выделения тепла конденсации можно пренебречь. Несмотря на различие в физических размерах струи максимум интенсивности молекулярного пучка оказался на приблизительно одинаковом расстоянии от среза сопла во всем диапазоне изменений давления торможения. Это обеспечивает определенные преимущества при создании технологической установки для кластерной обработки поверхностей. Как и следовало ожидать, с ростом давления торможения интенсивность молекулярного пучка возрастает. Максимальная зарегистрированная интенсивность достигла  $\sim 2 \cdot 10^{18}$  частиц/см<sup>2</sup>/с при  $P_0 = 1$  МПа.

Необходимо отметить отклонение от линейности роста интенсивности молекулярного пучка от давления при  $P_0 = 0,1$  МПа. Рассмотрим возможные причины этого. Первая и наиболее очевидная причина – влияние рассеяния на фоновом газе, проникающем в струю из окружающего простран-

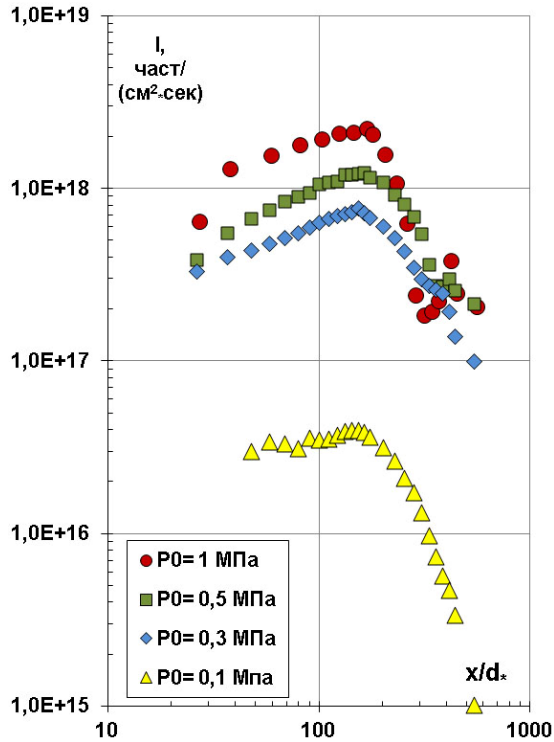


Рис. 5. Зависимости полной интенсивности молекулярного пучка от расстояния сопло – скиммер при фиксированных давлениях торможения

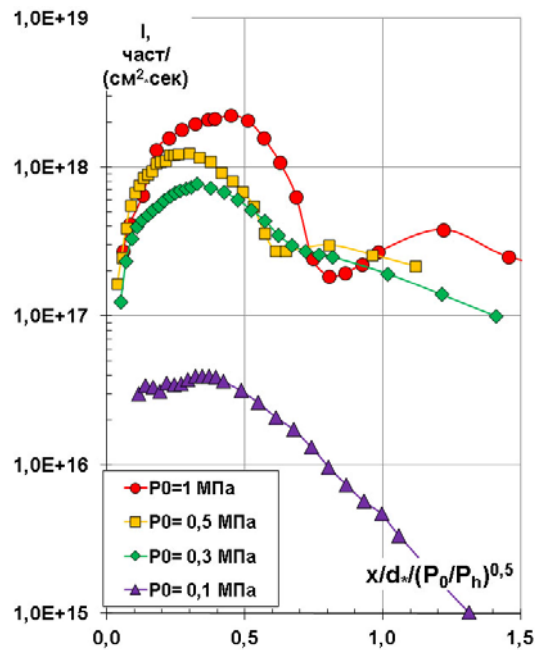


Рис. 6. Зависимости полной интенсивности молекулярного пучка от параметра  $x/d/\sqrt{P_0/P_h}$  при нескольких фиксированных давлениях торможения

ства при низких значениях числа Рейнольдса  $Re_L$ , рассчитанного по характерному размеру струи. Так, по оценкам, при наименьшем из  $P_0 Re_L$  не превышает 10, тогда как при максимальном – более 100. Таким образом, в первом случае мы имеем струю в режиме рассеяния, а во втором – с хорошо сформированной структурой замыкающих ударных волн. Этот факт иллюстрирует рис. 6, на котором интенсивности молекулярного пучка  $I$  (частиц/см<sup>2</sup>/с), пересчитаны в безразмерном масштабе  $x/d/\sqrt{P_0/P_h}$ . В этих условиях размер струи, т. е. расстояние от среза сопла до замыкающего скачка уплотнения, должен быть одинаков для всех значений  $P_0$  (здесь мы допускаем, что формула (1), апробированная при истечении из звуковых сопел, может быть с известными оговорками использована для нашего случая сверхзвукового сопла). При  $P_0 = 1$  МПа это действительно близко к истине. При этом давлении с ростом расстояния от сопла вслед за участком роста интенсивности начинается участок ее падения, после чего следует новый рост и последующее новое падение интенсивности, объясняемые, по-видимому, наличием второй «бочки». Со снижением давления торможения бочкообразная структура размывается и при минимальном  $P_0$  исчезает полностью.

Обращает на себя внимание отсутствие выхода зависимости на фиксированное значение, которое должно бы соответствовать величине сигнала от натекания в послескиммерную секцию фонового газа. Это отличие от «традиционной» картины изменений интенсивности в молекулярном пучке связано с особенностью формирования молекулярного пучка в кластерном потоке. Поскольку при удалении скиммера от сопла вниз по потоку за замыкающий скачок, а также в так называемом режиме рассеяния кластеры рассеиваются значительно слабее, чем мономеры, мы не зарегистрировали при меньших  $P_0$  выхода на фоновое значение интенсивности, а регистрируемая при минимальном давлении торможения интенсивность оказалась нелинейно ниже других данных. Следует также отметить, что в рассмотрении мы пренебрегли особенностями истечения газа из сверхзвукового сопла, которые также могли внести свои коррективы в ход зависимостей.

При разных  $P_0$  мы имеем конденсацию в потоке, завершающуюся на разных стадиях кластерообразования. Как известно, в ре-

в результате газодинамического разделения в свободной струе [9] на оси струи концентрируются более тяжелые частицы, в нашем случае – кластеры. Соответственно интенсивность кластерного молекулярного пучка зависит от доли конденсата (доли газа в связанном состоянии) и размера кластеров. Оценки, выполненные нами с использованием безразмерных параметров подобия течений с конденсацией (параметр Хагены,  $\Gamma \sim P_0 \cdot d_{\text{eq}}^{0,85}$ , где  $d_{\text{eq}}$  – эквивалентный диаметр сопла [10]) показывают, что при  $P_0 = 0,1$  МПа в струе имеет место стадия массовой конденсации, которая характеризуется резким ростом суммарной доли конденсата и относительно слабым ростом среднего размера кластеров. Но, как показывают оценки, при  $P_0 > 0,2$  МПа течение переходит в стадию развитой конденсации, на которой доля конденсата достигает постоянного значения ( $\sim 25\text{--}30\%$ ), а средний размер кластеров значительно увеличивается. Так, при  $P_0 = 0,1$  МПа средний размер кластеров  $N$  составляет порядка 80, при  $P_0 = 0,3$  МПа  $N = 1\,300$ , при  $P_0 = 0,5$  МПа  $N = 4\,300$ , а при максимальном давлении – около 22 000.

В предположении, что основной вклад в регистрируемую на оси молекулярного пучка интенсивность вносят в основном кластеры, используя эмпирические формулы [10], на основе измеренных данных были оценены интенсивности кластерного пучка, т. е. число кластеров, проходящих через единицу поверхности в единицу времени. Результаты для тех же значений давления торможения представлены на рис. 7. Как и следовало ожидать, при переходе к развитой конденсации, т. е. при заморозке доли конденсата и продолжающемся росте размеров кластеров, зависимость от давления проходит через максимум, и при дальнейшем росте давления число кластеров уменьшается. В нашей геометрии сверхзвукового потока и формирования молекулярного пучка была достигнута интенсивность  $5 \cdot 10^{14}$  кластеров/см<sup>2</sup>/с при среднем размере около 1 300 атомов.

Таким образом, осуществлен поиск оптимальных условий формирования интенсивного кластерного пучка аргона. Работа выполнена на модернизированном газодинамическом комплексе ЛЭМПУС-1. Достигнутые величины интенсивности обеспечивают формирование ионно-кластерного пучка, достаточного для процесса модифи-

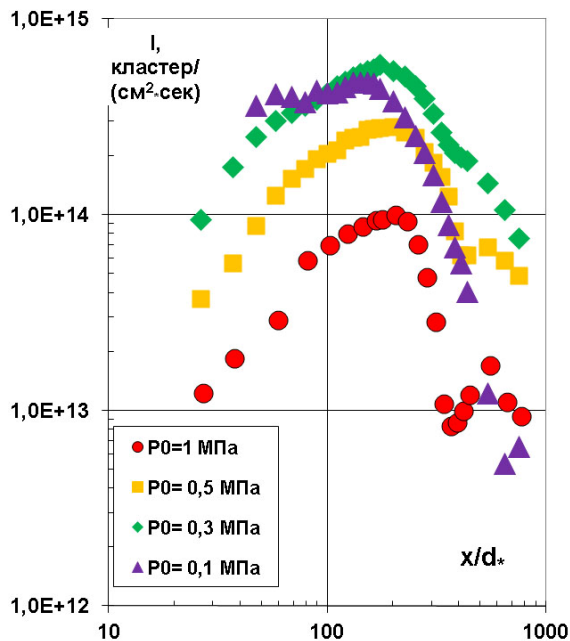


Рис. 7. Рассчитанная интенсивность кластерного молекулярного пучка от расстояния сопло – скиммер при фиксированных давлениях торможения

кации материалов. Поскольку повышение интенсивности молекулярного пучка кластеров за счет наращивания давления торможения не только ограничено откачными характеристиками системы, но и, как показали измерения, не эффективно, то дальнейшая интенсификация процесса возможна либо путем изменения геометрии сверхзвукового сопла, либо путем наращивания расхода истекающего газа при дальнейшем повышении скоростей откачки.

### Список литературы

1. Introduction to Focused Ion Beams: Instrumentation, Theory, Techniques and Practice / Eds. L. A. Giannuzzi, F. A. Stevens. Springer Press, 2004.
2. Aoki T., Seki T., Matsuo J. Study of Density Effect of Large Gas Cluster Impact by Molecular Dynamics Simulations // Nucl. Instr. and Meth. B. 2009. Vol. 267. P. 2999–3001.
3. Popok V. N. Energetic Clusters Ion Beams: Modification of Surfaces and Shallow Layers // Mater. Sci. Eng. R. 2011. Vol. 72. P. 137–157.
4. Kirkpatrick A. Gas Cluster Ion Beam Applications and Equipment // Nucl. Instr. and Meth. B. 2003. Vol. 206. P. 830–837.

5. Yamada I. Cluster Ion Beam Process Technology // Nucl. Instr. and Meth. B. 2007. Vol. 257. P. 632–638.

6. Toyoda N., Yamada I. Gas Cluster Ion Beam Equipment and Applications for Surface Processing // IEEE Trans. Plasma Sci. 2008. Vol. 36. P. 1471–1488.

7. Зарвин А. Е., Коробейщиков Н. Г., Мадирбаев В. Ж., Гартвич Г. Г., Каляда В. В., Айрапетян В. С. Универсальная малогабаритная вакуумная установка для газокинетических исследований // ПТЭ. 2000. № 5. С. 64–70.

8. Zarvin A. E., Korobeishchikov N. G., Kalyada V. V., Madirbaev V. Zh. Formation of Mixed Clusters in a Pulsed Helium – Oxygen – Isoprene Supersonic Jet // Eur. Phys. J. D. 2008. Vol. 49. P. 101–110.

9. Александров М. Л., Куснер Ю. С. Газодинамические молекулярные, ионные и кластированные пучки. Л.: Наука, 1989.

10. Hagen O. F. Cluster Ion Sources // Rev. Sci. Instrum. 1992. Vol. 63. P. 2374–2379.

*Материал поступил в редколлегию 23.03.2012*

**N. G. Korobeishchikov, A. E. Zarvin, V. V. Kalyada, M. D. Khodakov**

#### **HIGH INTENSITY ARGON CLUSTER BEAMS FORMATION FOR TECHNOLOGICAL PROCESSES**

Modernization of experimental complex LEMPUS-1 was done. Experimental investigations of argon cluster beams formation for ion-cluster surface modification technology were performed. Intensity of cluster beams up to  $5 \cdot 10^{14}$  clusters per  $\text{cm}^2$  per sec with average cluster size about 1300 was obtained. It was found the optimal conditions for cluster beam formation.

*Keywords:* supersonic jet, condensation, molecular beam, clusters, ionization.