

03;12

Влияние малых добавок метана и моносилана на кластерообразование в импульсных сверхзвуковых потоках аргона

© А.Е. Зарвин,¹ В.Ж. Мадирбаев,¹ Н.Б. Коробейщиков,¹ Г.Г. Гартвич,¹ Р.Г. Шарафутдинов²¹ Новосибирский государственный университет,
630090 Новосибирск, Россия² Институт теплофизики СО РАН,
630090 Новосибирск, Россия
e-mail: zarvin@phys.nsu.ru

(Поступило в Редакцию 25 марта 2005 г.)

Экспериментально исследована конденсация в импульсной сверхзвуковой струе газовых смесей аргона с метаном и моносиланом. Изучены зависимости от давления торможения интенсивностей сигналов на массах мономерных и кластерных ионов. Определены параметры перехода течения в режим конденсации. Рассмотрены особенности образования метановых кластеров. Показано, что в тройной смеси возможно образование смешанных кремний-углеродных комплексов.

Введение

Внимание к процессам кластерообразования в сверхзвуковых потоках смесей метана и моносилана с инертным разбавителем вызвано использованием этих газов в плазмохимических технологиях осаждения пленочных покрытий, конверсии углеводородов, переработки отходов и др. [1,2]. Большой интерес проявляется также к механизмам образования кремнийорганических комплексов [3]. Авторами настоящей работы ранее исследована конденсация в смеси аргон–моносилан [4,5]. Кроме кластеров гидрогенизированного кремния и аргона были обнаружены смешанные аргон-силановые комплексы и определены условия их формирования в потоке. Было показано, что конденсация в струе этой смеси при низких давлениях торможения ведет к образованию только моносилановых кластеров, а с ростом плотности в потоке на них начинают осаждаться атомы аргона. В настоящей работе продолжено исследование начальных стадий конденсации в импульсных струях смесей аргона с малыми молекулярными добавками. Исследованы бинарные 5–10% CH₄ + Ar, 5–10% SiH₄ + Ar, а также тройная 2.5% SiH₄ + 2.5% CH₄ + Ar смеси в сравнении с данными в чистом аргоне.

Эксперимент

Измерения выполнены на комплексе газодинамических стенов ЛЭМПУС Новосибирского государственного университета [6] в диапазоне давлений торможения $P_0 = 1–700$ кПа при температуре торможения $T_0 = 295$ К. Как и в предыдущих работах авторов [4–7], использован импульсный источник, обеспечивший широкий диапазон варьирования плотностей в сверхзвуковой недорасширенной струе смеси выбранного состава. Парциальные концентрации компонентов смесей в потоках

за звуковым соплом ($d_* = 0.55$ и/или 1 мм) измерялись с помощью молекулярно-пучковой масс-спектрометрии [8]. Использовался стандартный квадрупольный масс-спектрометр МС-7303, адаптированный к импульсным измерениям. Энергия электронов в ионизаторе масс-спектрометра задавалась равной 40 eV. Все измерения проведены на расстоянии сопло–скиммер $x/d = 175$, поэтому влиянием скиммерного взаимодействия пренебрегалось.

Состав кластеров определялся по зависимости от параметров торможения ди-, три-, тетра- и пентамерных компонент смесей метана и моносилана с аргоном. Данные по конденсации в импульсной струе чистого аргона получены как из новых измерений, так и из ранее опубликованных результатов [9].

Пример зависимости амплитуд сигналов для мономерных компонент в смеси 10% SiH₄ + 90% Ar от параметра $P_0 d^{0.8}$ приведен на рис. 1. Этот параметр достаточно широко используется для обобщения результатов по конденсации в аргоне. Как указано выше, в настоящих измерениях использованы сопла только двух диаметров. Поэтому основным параметром, изменявшимся в широких пределах, являлось давление торможения P_0 . В масс-спектре SiH₄ регистрировались сигналы на массах 29–32. Пик $m/e = 28$ (Si⁺) из-за присутствия в измерениях остаточного фона молекулярного азота из анализа исключен. Известно, что в равновесных условиях сечение диссоциативной ионизации SiH₂⁺ больше, чем SiH₃⁺ [10,11]. В настоящих измерениях, как и ранее в [7], интенсивности пиков этих двух ионов эквидистантны практически во всем диапазоне изменений давления торможения. Поэтому при дальнейших сравнениях в качестве мономерной компоненты моносилана будет использоваться как пик $m/e = 30$, так и $m/e = 31$.

Кремний имеет три устойчивых изотопа: ²⁸Si (92.2%), ²⁹Si (4.7%), ³⁰Si (3.0%), и соответственно сигналы на мас-

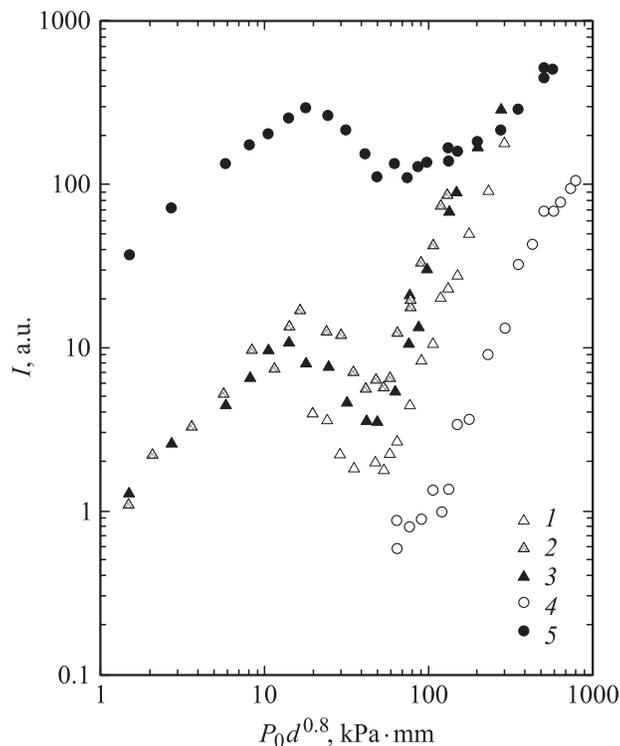


Рис. 1. Зависимость амплитуд массовых пиков мономеров аргона и моносилана от параметра $P_0 d^{0.8}$. Смесь 90% Ar + 10% SiH₄. $m/e = 29$ (1), 30 (2), 31 (3), 32 (4), $m/e = 40$ (5).

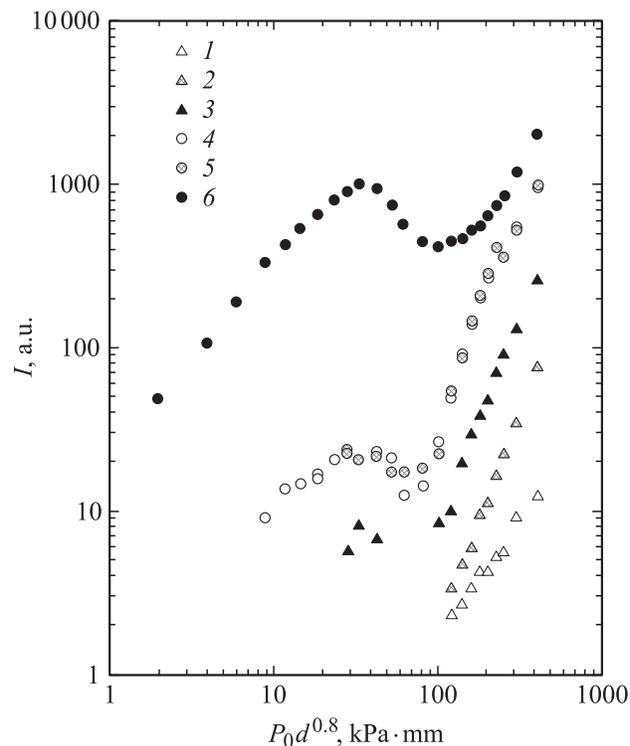


Рис. 2. Зависимость амплитуд массовых пиков мономеров аргона и метана от параметра $P_0 d^{0.8}$. Смесь 90% Ar + 10% CH₄. $m/e = 12$ (1), 13 (2), 14 (3), 15 (4), 16 (5), 40 (6).

сах 32 и 33 обычно приписывают ди- и тригидратам более тяжелых изотопов [12]. Поскольку ошибка, вносимая в ионный сигнал тяжелыми изотопами кремния (²⁹Si и ³⁰Si), мала по сравнению с погрешностью измерений, то процедура вычитания вклада тяжелых изотопов здесь и далее не производилась.

Аналогичные зависимости для смеси 10% CH₄ + 90% Ar приведены на рис. 2. Для метана даны амплитуды мономеров CH_{*n*}⁺, где $n = 0, 1, 2, 3, 4$. Нетрудно видеть, что практически во всем диапазоне изменения давления торможения (и соответственно локальной плотности в точке измерений) амплитуды компонент CH₄⁺ и CH₃⁺ также эквидистантны. В дальнейшем обсуждении в качестве мономерной компоненты метана будут приводиться данные для CH₄⁺ или CH₃⁺ ($m/e = 16$ или 15 соответственно). Как и следовало ожидать,

амплитуды масс $m/e = 14, 13$ и 12, т.е. CH₂⁺, CH⁺ и C⁺, оказываются значительно ниже. К сожалению, из-за малости сигналов эти компоненты удалось зарегистрировать только при больших значениях P_0 . Соотношение между сигналами CH_{*n*}⁺ при двух значениях параметра $P_0 d^{0.8}$ дано в таблице. Отличие от приведенных здесь же данных NIST [13] недостаточно велико, чтобы можно было говорить об искажающем влиянии конденсации.

Сопоставление результатов измерений в смесях аргон–метан и аргон–моносилан для двух соотношений компонент смесей (5 и 10% примеси в аргоне) для мономерных компонент представлено на рис. 3, а для димеров и тримеров — на рис. 4: *a* — данные по аргон-метановым смесям, *b* — по аргон-моносилановым. В качестве иллюстрации воспроизводимости данных на рис. 3, *a* приведены результаты для смеси 5% CH₄ + 95% Ar, полученные в трех различных экспериментах (смеси 2–4), выполненных в разное время. Совпадение убедительное, можно говорить о высокой достоверности полученных результатов. Там же приведены зависимости, полученные в аналогичных условиях в чистом аргоне.

Изменение зависимостей интенсивностей массовых пиков от давления торможения традиционно для молекулярно-пучковых измерений в сверхзвуковых потоках в режимах с конденсацией. В качестве нижней границы кластерообразования (появление димеров) на зависимости от давления торможения обычно принимается

Сравнение компонент CH_{*n*}⁺ при масс-спектрометрии метана

| m/e , a.u.m. | NIST | Эксперимент | |
|----------------|-------|------------------------|------|
| | | $P_0 d^{0.8}$, kPa·mm | |
| | | 100 | 200 |
| 12 | 0.04 | 0.04 | 0.02 |
| 13 | 0.105 | 0.06 | 0.04 |
| 14 | 0.204 | 0.19 | 0.17 |
| 15 | 0.888 | 0.89 | 0.94 |
| 16 | 1 | 1 | 1 |

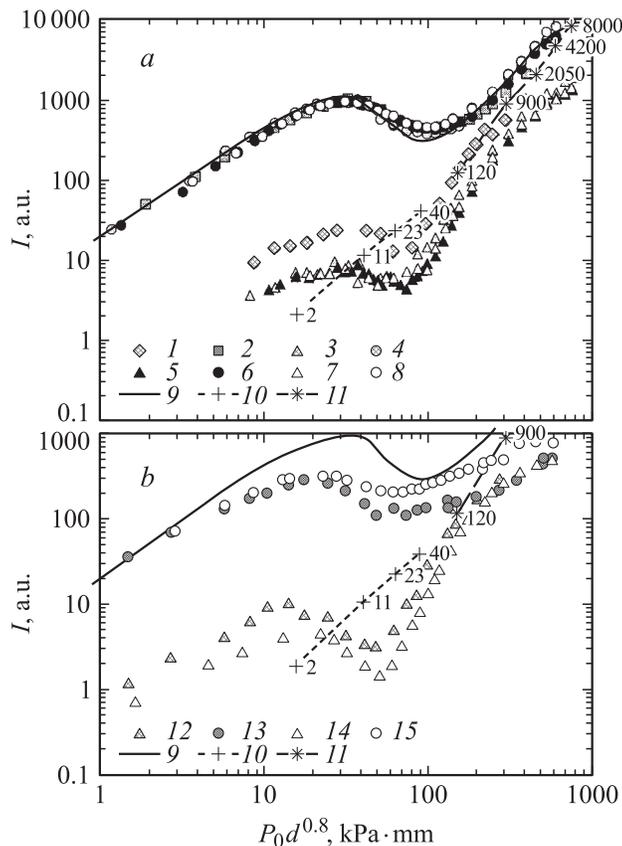


Рис. 3. Сравнение мономерных компонент при значениях концентрации примеси 5 и 10% в аргоне. *a* — аргон-метановые смеси: 1 — $m/e = 15$ — mix 1 (10% CH_4), 2 — $m/e = 40$ — mix 1 (10% CH_4), 3 — $m/e = 15$ — mix 2 (5% CH_4), 4 — $m/e = 40$ — mix 2 (5% CH_4), 5 — $m/e = 15$ — mix 3 (5% CH_4), 6 — $m/e = 40$ — mix 3 (5% CH_4), 7 — $m/e = 15$ — mix 4 (5% CH_4), 8 — $m/e = 40$ — mix 4 (5% CH_4), 9 — $m/e = 15$ — Ar pure, 10 — N clust [20], 11 — N clust [21]; *b* — аргон-моносилановые смеси: 12 — $m/e = 31$ — mix 5 (10% SiH_4), 13 — $m/e = 40$ — mix 5 (10% SiH_4), 14 — $m/e = 31$ — mix 6 (5% SiH_4), 15 — $m/e = 40$ — mix 6 (5% SiH_4), 9 — $m/e = 40$ — Ar pure, 10 — N clust [20], 11 — N clust [21].

начало отклонения от линейного роста интенсивности сигналов мономеров. Область вблизи локального максимума для мономеров считается областью образования малых кластеров. Последующее увеличение давления P_0 приводит к развитию конденсации и росту среднего размера кластеров. Связывание части мономеров в кластерах и выделение тепла конденсации, приводящее к большему развороту струи в поперечном направлении, вызывают падение плотности газа на оси струи [14] и, как следствие, уменьшение интенсивности сигналов на массе мономера в молекулярном пучке. Считается, что течение переходит в режим развитой конденсации [15].

В результате ионизации низкоэнергетичными электронами в детекторе масс-спектрометра кластеры фрагментируют, что искажает регистрируемые масс-спектры [16].

Экспериментальное [17] и теоретическое [18] исследование ионизации малых кластеров аргона Ar_n (до $n = 9$) при бомбардировке электронами показали, что при ионизации кластера Ar_n положительный заряд локализуется на димере, после чего в результате развала комплекса $\text{Ar}_2^+ - \text{Ar}_{n-2}$ образуются преимущественно ионы димеров Ar_2^+ и, с меньшей вероятностью, других олигомеров. Устойчивость димера обусловлена его энергетической прочностью [16]. Поэтому резкий начальный рост интенсивности димеров на графике объясняется значительным вкладом в сигнал осколков кластеров большего размера.

С увеличением размера кластеров при дальнейшем росте давления торможения происходит перестройка их структуры и изменение фазового состояния [19]. Фрагментация таких кластеров, по-видимому, приводит преимущественно к образованию ионов мономеров. Это вызывает падение сигналов на массах ди-, три- и тетра-

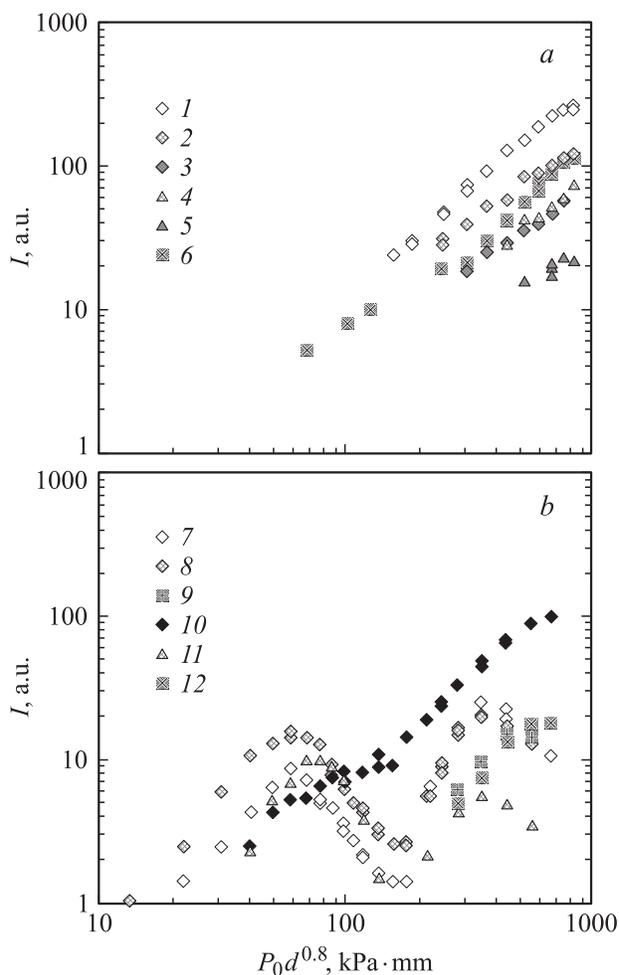


Рис. 4. Зависимость амплитуд кластерных компонент смесей от параметра $P_0 d^{0.8}$. *a* — смесь 95% Ar + 5% CH_4 : $m/e = 28$ — C_2H_4^+ (1), 29 — C_2H_5^+ (2), 30 — C_2H_6^+ (3), 43 — C_3H_7^+ (4), 44 — C_3H_8^+ (5), 80 — Ar_2^+ (6); *b* — смесь 95% Ar + 5% SiH_4 : $m/e = 62$ — Si_2H_6^+ (7), 63 — Si_2H_4^+ (8), 70 — ArSiH_2^+ (9), 80 — Ar_2^+ (10), 94 — $\text{Si}_3\text{H}_{10}^+$ (11), 110 — $\text{Ar}_2\text{SiH}_2^+$ (12).

меров, замедление падения и последующий рост сигнала мономеров. Стадию формирования крупноразмерных кластеров характеризует резкий рост интенсивности сигналов мономеров, а в дальнейшем и малых кластеров.

На рис. 3, *a* и *b* пунктиром нанесены экспериментальные данные по размерам кластеров аргона, N_{clust} , взятые из работ [20,21]. Здесь же цифрами нанесены некоторые численные значения этих размеров. Очевидно, что сравнение этих результатов с нашими данными достоверно только в чистом аргоне. Минимальному давлению торможения, при котором обнаруживаются димеры в потоке чистого аргона, соответствует значение среднего размера кластеров аргона, согласно [20], равное двум. Локальный максимум на линии мономера аргона соответствует среднему размеру кластеров ~ 20 , а локальный минимум — около 100. При максимальных для нашей работы давлениях P_0 средний размер кластеров в потоке чистого аргона должен достигать нескольких тысяч единиц.

Обсуждение результатов

При сравнении смесей с метаном и моносиланом хорошо видны различия в изменении мономерных и кластерных компонент. По-видимому, в отличие от моносилана примесь метана не влияет на начальную стадию конденсации аргона. Так, графики амплитуды пика мономера Ag в смеси Ag—CH₄ и в чистом Ag практически совпадают во всем диапазоне изменения параметра $P_0 d^{0.8}$ (рис. 3, *a*) в отличие от смеси Ag—SiH₄ (рис. 3, *b*), где изменение существенно. Зависимость амплитуды пика метана проходит через максимум при том же P_0 , что и кривая для аргона, тогда как для моносилана этот максимум значительно смещен в область меньших значений $P_0 d^{0.8}$.

Кластеры моносилана обнаруживаются при существенно меньших плотностях потока, чем кластеры метана (рис. 4, *a, b*). Кроме того, для малых кластеров метана не наблюдается характерных для смесей с моносиланом экстремумов. Однако при дальнейшем росте давления торможения в области вторичного роста интенсивности мономеров ход зависимостей для мономеров метана и моносилана практически совпадает. Эта область характеризуется интенсивным ростом крупных кластеров.

Поскольку метан и моносилан являются малыми примесями в аргоне, при малых $P_0 d^{0.8}$ интенсивности их мономерных составляющих значительно меньше. При этом экстремумы мономерных компонент аргона и метана в бинарной смеси совпадают, что, по-видимому, следует интерпретировать как параллельный рост малых кластеров аргона и метана. Зарегистрировать сколько-нибудь заметное количество димеров метана при малых плотностях потока (низкие значения параметра $P_0 d^{0.8}$) не удалось.

В смеси аргона с моносиланом, как было установлено ранее [4,8], сначала происходит образование кластеров моносилана. Это приводит к падению плотности на оси потока и замедлению роста интенсивности мономера аргона. И хотя кластеры аргона обнаруживаются позднее, чем моносилана, в целом процесс кластерообразования происходит более эффективно.

При дальнейшем росте параметра $P_0 d^{0.8}$ и соответственно плотности в потоке в обеих бинарных смесях происходит резкий повторный рост интенсивности мономеров как аргона, так и малой примеси. В литературе резкий вторичный рост интенсивности пиков мономеров принято объяснять образованием больших кластеров и их развалом при ионизации в детекторе масс-спектрометра. При этом считается, что большие кластеры распадаются преимущественно на мономеры [21]. Интенсивность мономера примеси растет опережающими темпами, а в аргон-моносилановой (10% моносилана) смеси эти интенсивности даже сравниваются. Обращает на себя внимание тот факт, что рост интенсивности обеих малых примесей практически эквидистантен. В аргон-моносилановой смеси причина такого роста может быть объяснена преобладающим кластерообразованием примеси, что должно приводить к росту мономерной компоненты именно моносилана. Однако в метансодержащей смеси, как показывают наши измерения, рост кластеров аргона и метана происходит одновременно. Вероятно, укрупнение кластеров метана происходит быстрее, чем кластеров аргона в их смеси. Это приводит к более быстрому росту интенсивности мономеров метана при масс-спектрометрировании. С другой стороны, в смеси с моносиланом на моносилановых зародышах возможно постепенное налипание аргонной „шубы“, приводящее к образованию смешанных осколков: аргон-моносилановых димеров и тримеров [4] (рис. 4, *b*). Возможно, что в смеси с метаном образующиеся кластеры имеют моноатомную структуру. Однако мы не исключаем и возможного существования других объяснений, обусловленных, например, сложными механизмами развала кластеров разного размера, структуры и фазового состава. Следует также отметить, что в отличие от смеси Ag—SiH₄, в смеси Ag—CH₄ смешанные кластеры обнаружить не удалось.

Представленные результаты по бинарным смесям дают основание предполагать, что в тройной смеси Ag—SiH₄—CH₄ также следует ожидать значительного влияния моносилана на процессе кластерообразования. На рис. 5 приведены результаты масс-спектрометрии кластеризованного потока тройной смеси, в которой метан и моносилан являются малыми (по 2.5% объема) добавками в газе-носителей аргоне. Здесь, как и ранее, относительные интенсивности выбранных пиков мономеров даны в зависимости от величины параметра $P_0 d^{0.8}$. Для сравнения приведены также данные по мономеру аргона в чистом аргоне (сплошная кривая) и смесях (кружки белого, серого и черного цветов), а также для мономеров метана (серые квадраты) и моносилана (черные

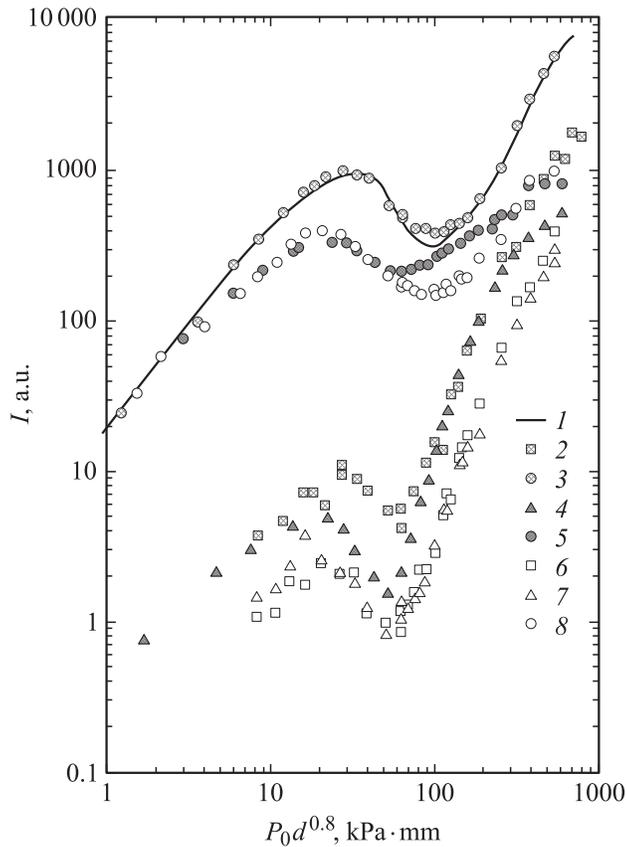


Рис. 5. Сравнение изменений мономерных компонент аргона, метана и моносилана в тройной смеси в отличие от бинарных. $m/e = 40$ — Ar pure (1), 16 — Ar + CH₄ (2), 40 — Ar + CH₄ (3), 31 — Ar + SiH₄ (4), 40 — Ar + SiH₄ (5), 16 — Ar + CH₄ + SiH₄ (6), 31 — Ar + CH₄ + SiH₄ (7), 40 — Ar + CH₄ + SiH₄ (8).

треугольники) в соответствующих бинарных смесях. Как и ранее, для метана выбран пик $m/e = 16$, для моносилана — $m/e = 31$. Как видно из результатов, приведенных на рис. 5, в тройной смеси (светлые значки) первый максимум интенсивности пика аргона обнаруживается при том же значении параметра $P_0 d^{0.8}$, что и в бинарной смеси 95% Ar–5% SiH₄, тогда как минимум совпадает с минимумом аргона в смеси 95% Ar + 5% CH₄. Данные для мономеров метана и силана в пределах экспериментального разброса данных ложатся на единую зависимость, причем изменение этой зависимости эквидистантно зависимости для бинарной смеси с моносиланом, экстремумы для этих экспериментальных зависимостей совпадают. Таким образом, в тройной смеси процесс кластерообразования происходит иначе, чем в бинарных смесях тех же компонентов: при низких плотностях в потоке, при образовании зародышей — по механизму бинарной смеси с моносиланом, при более высоких, при росте размеров кластеров — подобно бинарной смеси с метаном.

Использование импульсной аппаратуры формирования и диагностирования газовых потоков с конденсацией

позволяет измерять не только амплитуды сигналов, но и время прихода переднего фронта и полуширину импульсов мономеров и малых кластеров отдельных компонент смеси. В [22] было установлено, что переход течения в режим с конденсацией приводит к изменениям этих параметров. Регистрация временных параметров импульсного потока позволяет выделять отдельные стадии конденсации.

На рис. 6, *a–c* приведены данные по полуширине D (в микросекундах) импульсов мономеров в смесях 95% Ar + 5% CH₄, 95% Ar + 5% SiH₄, 95% Ar + 2.5% CH₄ + 2.5% SiH₄ соответственно. Там же для сравнения нанесены результаты для чистого аргона. В смесях наблюдается отход от зависимости для потока чистого аргона с одновременным расслоением данных для компонент смесей, а характерные точки на графиках длительности импульсов коррелируют с данными на графике амплитуд соответствующих компонент.

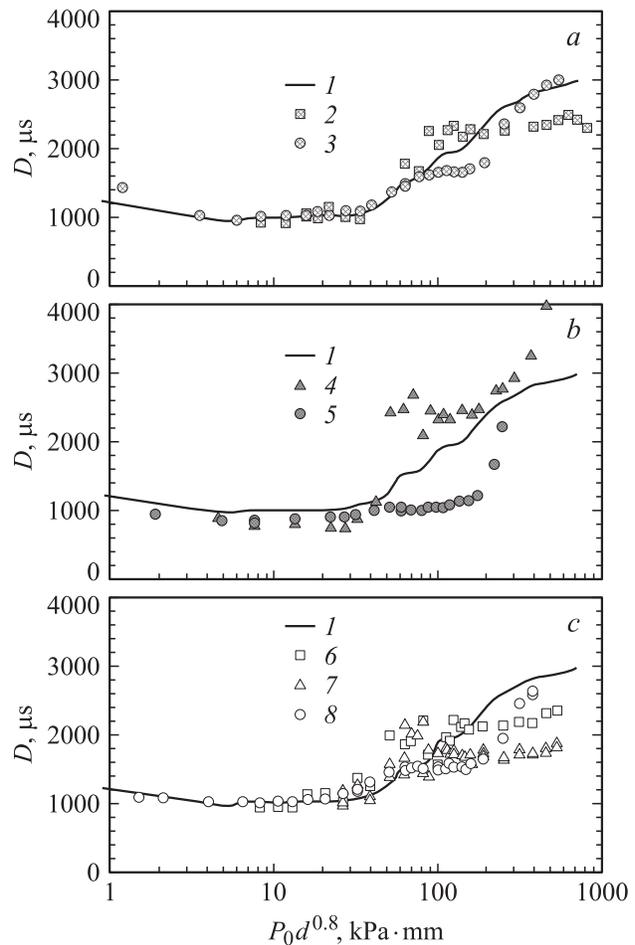


Рис. 6. Зависимости полуширины импульсов от параметра $P_0 d^{0.8}$. *a* — 95% Ar + 5% CH₄, *b* — 95% Ar + 5% SiH₄, *c* — 95% Ar + 2.5% CH₄ + 2.5% SiH₄. $m/e = 40$ — Ar pure (1), 16 — Ar + CH₄ (2), 40 — Ar + CH₄ (3), 31 — Ar + SiH₄ (4), 40 — Ar + SiH₄ (5), 16 — Ar + CH₄ + SiH₄ (6), 31 — Ar + CH₄ + SiH₄ (7), 40 — Ar + CH₄ + SiH₄ (8).

Резкое изменение полуширины импульса на массе только одной из компонент смеси, к тому же являющейся малой примесью, невозможно с точки зрения газодинамики потока. Причиной обнаруженного эффекта, как уже отмечалось выше, является развал кластеров в датчике масс-спектрометра. Полуширина импульсов на массах пиков малых кластеров, как было обнаружено в ходе измерений настоящей работы, меняется незначительно во всем диапазоне вариации параметра $P_0 d^{0.8}$. Сравнение зависимостей полуширины и интенсивности газовых импульсов отдельных компонентов (мономеров, кластеры примесей и газа-носителя) от $P_0 d^{0.8}$ позволяет рассмотреть различия в процессах кластерообразования в исследуемых смесях на разных стадиях конденсации.

Изменения полуширины импульса можно разделить на несколько диапазонов по значениям $P_0 d^{0.8}$.

1. При малых значениях $P_0 d^{0.8}$ в отсутствие конденсации во всех смесях интенсивность сигналов мономеров растет линейно по $P_0 d^{0.8}$. Полуширина импульсов D как для аргона, так и для малых примесей слабо уменьшается с ростом давления торможения аналогично данным для струи чистого аргона [23]. Это соответствует утверждению, что газодинамика импульсного потока для всех смесей определяется газом-носителем — аргоном.

2. На начальной стадии конденсации в потоке регистрируются малые кластеры ($n \leq 10-20$), что соответствует отходу от линейного роста и выходу на максимум амплитуд пиков мономеров. Амплитуды мономеров аргона в аргон-метановой смеси и в чистом аргоне совпадают, в то время как в аргон-моносилановой и тройной смесях лежат ниже. Полуширина импульсов мономеров смесей, как и в чистом аргоне, слабо возрастает, а отклонения значений D для мономеров смесей от мономеров в потоке чистого аргона не зарегистрированы. Следовательно, конденсация в аргон-метановой смеси начинается при тех же $P_0 d^{0.8}$, что и в чистом аргоне. При этом интенсивность димеров аргона значительно меньше, чем в чистом газе (рис. 4, а), что свидетельствует об одновременной конденсации аргона и метана.

Добавление в аргон моносилана приводит к сдвигу начала конденсации в область меньших локальных плотностей (меньших значений $P_0 d^{0.8}$). Первыми в потоке появляются малые кластеры моносилана (рис. 4, б), которые и являются зародышами конденсации. Кластерообразование моносилана препятствует конденсации аргона, в результате в потоке отсутствуют тримеры и более тяжелые кластеры аргона.

В тройной смеси конденсация начинается так же рано, как и в смеси аргон-моносилан, что, по-видимому, свидетельствует о стимулировании моносиланом кластерообразования в потоке.

3. Увеличение $P_0 d^{0.8}$ приводит к росту доли конденсата и среднего размера кластеров, к падению интенсивности мономеров во всех газах. В чистом аргоне фрагментация приводит к росту полуширины импульса мономеров пропорционально среднему размеру кластеров.

В смеси аргон-метан наблюдается практически синхронное уменьшение интенсивности сигналов с одновременным ростом полуширины импульсов как газа-носителя, так и примеси, что свидетельствует об одновременной конденсации обоих газов. Отсутствие сигналов на массе димеров и тримеров метана, возможно, объясняется малой вероятностью образования малых кластеров.

В аргон-моносилановой смеси на данном этапе конденсация аргона замораживается на уровне димеров, в то же время размер кластеров моносилана продолжает расти. Об этом свидетельствуют, во-первых, сильное падение интенсивности примеси по сравнению с аргоном (рис. 1) и, во-вторых, то, что полуширина мономеров аргона после небольшого подъема не меняется, тогда как полуширина мономеров моносилана увеличивается в 2.5 раза (рис. 6, б).

В тройной смеси практически одинаковое уменьшение амплитуды мономеров и синхронный рост полуширины объясняются, по-видимому, совместной конденсацией всех компонент смеси с образованием смешанных кластеров.

4. Этап развитой конденсации в чистых газах характеризуется замораживанием массовой доли конденсата при продолжающемся росте среднего размера кластеров. Перестройка структуры кластеров, изменение их фазового состояния и соответственно механизма фрагментации приводят к тому, что амплитуда кластерных сигналов начинает падать, а мономеров — расти.

В аргон-метановой смеси быстрый рост амплитуды и полуширины мономеров метана свидетельствуют о том, что конденсация примеси развивается более интенсивно, чем газа-носителя. С ростом давления торможения значительная часть метана оказывается в связанном состоянии. В результате полуширина мономеров не растет, хотя амплитуда продолжает увеличиваться. При дальнейшем увеличении плотности и сохраняющемся пересыщении среды конденсация продолжается за счет аргона — растут амплитуда и полуширина его мономеров.

В смеси аргон-моносилан массовая конденсация примеси продолжает сдерживать конденсацию газа-носителя до тех пор, пока практически вся примесь не окажется в связанном состоянии. С ростом давления торможения и соответственно плотности в потоке начинается массовая конденсация аргона. При этом на кластеры, состоящие из молекул моносилана, осаждаются атомы аргона. При развале таких смешанных кластеров были зарегистрированы аргон-силановые комплексы [4]. Полуширина мономеров аргона начинает резко расти.

В тройной смеси конденсация газа-носителя также ограничена по сравнению с чистым аргоном, но не так сильно, как в смеси аргон-моносилан. Можно говорить о совместной конденсации всех трех компонент. Размер кластеров (полуширина мономеров) достигает насыщения так же рано, как и в аргон-моносилане. Однако

полуширина импульсов заметно меньше, чем в бинарных смесях, что подтверждает совместный характер конденсации. Этот процесс должен приводить к образованию смешанных кремнийорганических комплексов. Зарегистрированные при высоких значениях параметра $P_0 d^{0.8}$ (давления торможения) интенсивности некоторых массовых пиков в тройной смеси, соответствующих осколкам кластеров с массами $m/e = 46, 54, 69, 87$, не обнаруженные в бинарных смесях, могут быть идентифицированы как метан-силановые фрагменты больших кластеров.

Работа поддерживалась Министерством науки и технической политики РФ („Перечень уникальных научно-исследовательских и экспериментальных установок национальной значимости“, регистрационный № 06-05).

Список литературы

- [1] *Sharafutdinov R.G., Skrinnikov A.V., Parakhnevich A.V.* et al. // J. Appl. Physl 1996. Vol. 79. N 9. P. 7274–7277.
- [2] *Randall R.W., Ibbotson J.B., Howard B.J.* // J. Chem. Phys. 1994. Vol. 100. N 10. P. 7051–7060.
- [3] *Desalvo A., Giorgis F., Pirri C.F.* et al. // J. Appl. Phys. 1997. Vol. 81. N 12. P. 7973–7980.
- [4] *Шарафутдинов Р.Г., Зарвин А.Е., Коробейщиков Н.Г.* и др. // Письма в ЖТФ. 1999. Т. 25. Вып. 21. С. 47–51.
- [5] *Зарвин А.Е., Коробейщиков Н.Г., Мадирбаев В.Ж.* и др. // ЖТФ. 2001. Т. 71. Вып. 4. С. 141–142.
- [6] *Зарвин А.Е., Коробейщиков Н.Г., Мадирбаев В.Ж.* и др. // ПТЭ. 2000. № 5. С. 64–70.
- [7] *Зарвин А.Е., Коробейщиков Н.Г., Мадирбаев В.Ж.* и др. // Теплофизика и аэромеханика. 2001. Т. 8. № 3. С. 427–439.
- [8] *Гартвич Г.Г., Зарвин А.Е., Каляда В.В.* и др. // ПТЭ. 1996. № 5. С. 160–161.
- [9] *Korobeishchikov N.G., Zarvin A.E., Madirbaev V.Zh.* et al. // Plasma Chemistry & Plasma Processing. 2005. Vol. 25. N 4.
- [10] *Krishnakumar E., Srivastava S.K.* // Contrib. Plasma Phys. 1995. Vol. 35. N 6. P. 395–404.
- [11] *Basner R., Schmidt M., Tarnovsky V.* et al. // Int. J. Mass Spectr. and Ion Physics. 1997. Vol. 171. N 1. P. 83–93.
- [12] *Ding A., Cassidy R.A., Cordis L.S.* et al. // J. Chem. Phys. 1985. Vol. 83. N 7. P. 3426–3432.
- [13] Национальный институт стандартов и технологии США (NIST) // NIST Chemistry WebBook. <http://webbook.nist.gov/chemistry/>.
- [14] *Madirbaev V.Zh., Palopezhentsev S.A., Yarygin V.N.* et al. // Proc. 15th Intern Symposium on Rarefied Gas Dynamics. 1986. Vol. 2. P. 179–187.
- [15] *Khmel S.Ya., Sharafutdinov R.G., Belikov A.E.* et al. // Preprint of Inst. Thermophysics. № 271. Novosibirsk, 1994. 93 p.
- [16] *Александров М.Л., Куснер Ю.С.* Газодинамические молекулярные, ионные и кластированные пучки. Л.: Наука, 1989. 271 с.
- [17] *Buck U., Meyer H.* // J. Chem. Phys. 1986. Vol. 84. N 9. P. 4854–4861.
- [18] *Bastida A., Halberstadt N., Beswick J.A.* et al. // Chem. Phys. Lett. 1996. Vol. 249. P. 1–6.
- [19] *Farges J., de Feraudy M.F., Raoult B.* et al. // J. Chem. Phys. 1986. Vol. 84. N 6. P. 3491–3501.
- [20] *Buck U., Krohne R.* // J. Chem. Phys. 1996. Vol. 105. N 13. P. 5408–5415.
- [21] *Karnbach R., Joppien M., Stapelfeldt J.* et al. // Rev. Sci. Instrum. 1993. Vol. 64. N 10. P. 2838–2849.
- [22] *Зарвин А.Е., Коробейщиков Н.Г., Мадирбаев В.Ж.* и др. // Письма в ЖТФ. 2000. Т. 26. Вып. 22. С. 21–25.
- [23] *Коробейщиков Н.Г., Зарвин А.Е., Мадирбаев В.Ж.* // ЖТФ. 2004. Т. 74. Вып. 8. С. 21–29.