## 03;12 Конденсация в импульсных свободных струях смеси моносилан–аргон: временные характеристики импульсов

© А.Е. Зарвин, Н.Г. Коробейщиков, В.Ж. Мадирбаев, Р.Г. Шарафутдинов

Новосибирский государственный университет, 630090 Новосибирск, Россия E-mail: zarvin@phys.nsu.ru

## (Поступило в Редакцию 28 августа 2000 г.)

Выполнено исследование конденсации смеси 5% SiH<sub>4</sub>+95%Ar в импульсных сверхзвуковых газовых потоках. Анализ временны́х характеристик, регистрируемых методом импульсной молекулярно-пучковой масс-спектрометрии, позволил определить последовательность протекания отдельных стадий процесса конденсации. Показано, что конденсация в импульсной струе аргон-моносилановой смеси приводит к селективному нагреву компонентов смеси, причем этот процесс зависит от плотности смеси в форкамере сопла.

Настоящая работа продолжает представление новых экспериментальных данных, полученных при исследованиях процессов кластерообразования и развитой конденсации в импульсных сверхзвуковых неравновесных потоках чистых газов их смесей [1,2]. Актуальность изучения свободных струй моносилана и его смесей акцентирована новыми подходами к проблемам получения аморфных и поликристаллических пленок кремния [3]. Возможности комплекса газодинамических стендов "ЛЭМПУС" Новосибирского государственного университета, обеспечивающего достижение экстремально высоких плотностей при свободном расширении газовых струй в вакуум в импульсном режиме истечения, позволили получить новую информацию о механизмах протекания конденсации.

В экспериментах регистрировались время прихода *T* переднего фронта газового импульса на датчик массспектрометра (рис. 1) и его полуширина *D* (рис. 2) в зависимости от давления торможения  $P_0$  смеси 5%SiH<sub>4</sub>+95%Ar в диапазоне 0–700 kPa. Условия проведения экспериментов и использованное оборудование аналогичны описанным в работах [1,2]. Отслеживалось изменение T и D от  $P_0$  для монометров аргона (m/e = 40) и компонент моносилана (m/e = 31 и 33), водорода (m/e = 1), а также ди-, три- и тетрамеров Ar и SiH<sub>4</sub> (m/e = 63, 80, 94, 111, 160). Представленные данные, находясь в хорошем согласии с результатами измерений по интенсивностям массовых пиков [1], не только обеспечивают более детальное изучение условий протекания отдельных стадий конденсации, но и дают возможность описать механизмы этих процессов.

Зависимости *T* и *D* от давления, приведенные на рисунках, позволяют выделить несколько стадий процесса. При  $P_0 < 20$  kPa данные для мономеров SiH<sub>4</sub> (m/e = 31) и аргона (m/e = 40) совпадают, т.е.



Рис. 1.



SiH<sub>4</sub>, являющийся малой примесью в аргоне, расширяется как одноатомный газ-носитель. В этом диапазоне полуширина импульса практически постоянна, а время прихода плавно уменьшается. Это вызвано ростом числа столкновений в потоке, приводящим к формированию невозмущеного ядра сверхзвуковой струи и увеличению предельного числа Maxa.

С увеличением  $P_0$  до 50 kPa начинают возрастать значения D для мономеров, причем прирост полуширины импульса компонент моносилана почти в 3 раза больше, чем аргона, и регистрируются димеры моносилана (на рисунках показаны данные для m/e = 63, т.е. Si<sub>2</sub>H<sub>7</sub><sup>+</sup>). Следовательно, в этом диапазоне начинается кластерообразование моносилана. Скорости мономеров Ar и SiH<sub>4</sub>, судя по поведению T, продолжают возрастать, поэтому рост полуширины импульса достигается за счет "хвоста" заторможенных частиц.

При дальнейшем увеличении  $P_0$  до 100 kPa параметр T для мономеров моносилана значительно возрастает, а в масс-спектре появляются кластеры аргона и смешанные аргон-силановые комплексы. Время прихода и полуширина импульсов для всех регистрируемых масс (кроме T для m/e = 31) стабилизируются. По-видимому, в этом диапазоне давлений происходит преимущественный рост силановых кластеров, а также смешанных, инициированных силановыми зародышами.

Начиная с  $P_0 \sim 100$  kPa полуширина мономера Ar медленно, а при  $P_0 > 200$  kPa резко возрастает, тогда как для силана (m/e = 31) увеличение D отмечается только с  $P_0 \sim 180$  kPa. Можно предположить, что при  $P_0 > 100$  kPa начинается рост больших кластеров Ar.

При  $P_0 > 200 \, \text{kPa}$ , по-видимому, сказывается влияние скиммерного взаимодействия в конденсирующемся газе [2], что подтверждает и замедление роста интенсивности импульсов 31-й и 40-й масс (рис. 2). Ионы водорода  ${
m H}^+$  (m/e=1) и SiH\_5<sup>+</sup> (m/e=33) также появляются при  $P_0 > 100 \,\mathrm{kPa}$  (а их интенсивности растут при повышении P<sub>0</sub> практически эквидистантно). Полуширина этих сигналов стремится к пределу, совпадающему с уровнем стабилизации для m/e = 31, а время прихода *T* монотонно возрастает с ростом P<sub>0</sub>, причем от значений, соответствующих не мономерам, а малым кластерам. Ионы  $H^+$  и SiH<sub>5</sub><sup>+</sup> появляются, скорее всего, при диссоциативной ионизации кластеров, вначале малых силановых, а при возрастании Ро больших смешанных, в ионизаторе масс-спектрометра. Кроме того, в режиме сильного скиммерного взаимодействия рост полуширины пиков H<sup>+</sup> и SiH<sub>5</sub><sup>+</sup> может быть связан с развалом больших кластеров на скиммере. Вероятной причиной возрастания D для мономеров моносилана и аргона мог бы служить развал электронным ударом в детекторе массспектрометра больших кластеров, имеющих благодаря эффекту проскальзывания меньшие скорости в струе по сравнению с мономерами [4]. Однако падение скоростей этих кластеров в несколько раз представляется столь же маловероятным, как и большое различие в стабильности силановых, аргоновых и смешанных кластеров на разных стадиях процесса. Поэтому такое увеличение D мономеров, различное у аргона и моносилана, свидетельствует, скорее всего, о селективном разогреве мономеров аргона и моносилана за счет выделения тепла конденсации в импульсной струе смеси.

Работа поддержана Российским фондом фундаментальных исследований (проект № 00-03-33021а) и Программой Министерства науки и технической политики РФ по поддержке уникальных научно-исследовательских и экспериментальных установок национальной значимости (код проекта 06-05).

## Список литературы

- [1] Шарафутдинов Р.Г., Зарвин А.Е., Коробейщиков Н.Г. и др. // Письма в ЖТФ. 1999. Т. 25. Вып. 21. С. 48–51.
- [2] Зарвин А.Е., Коробейщиков Н.Г., Мадирбаев В.Ж. и др. // Письма в ЖТФ. Направлена в печать.
- [3] Sharafutdinov R.G., Skrinnikov A.V., Parakhnevich A.V. et al. // J. Appl. Phys. 1996. Vol. 79. N 9. P. 7274.
- [4] Hagena O.F. // Surf. Sci. 1981. Vol. 106. P. 101-116.