

МЕХАНИЗМЫ КОАГУЛЯЦИИ И РОСТА ПЫЛЕВЫХ ЧАСТИЦ В НИЗКОТЕМПЕРАТУРНОЙ ПЛАЗМЕ

*М. А. Олеванов**, *Ю. А. Манжелевич***, *Т. В. Рахимова*

*Научно-исследовательский институт ядерной физики им. Д. В. Скобельцына
Московского государственного университета им. М. В. Ломоносова
119899, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 4 ноября 2002 г.

Предлагается теоретическая модель образования пылевых кластеров в низкотемпературной плазме, включающая описание всех основных этапов данного процесса, начиная от стадии начального роста частиц, их коагуляции, и заканчивая фазой насыщения. В рамках построенной теории впервые найдено объяснение наблюдаемого в экспериментах порогового характера процесса коагуляции и получена оценка критического размера микрочастиц, после достижения которого становится возможным переход от роста частиц за счет осаждения материала из газовой фазы к их коагуляции. С использованием полученных аналитически выражений для константы скорости коагуляции было проведено численное моделирование процесса образования кластеров по данным, взятым для реальных экспериментальных условий, а также изучена эволюция функции распределения частиц по размерам в течение всего процесса. Прямое сравнение результатов численного расчета с данными эксперимента показало, что они находятся в хорошем согласии с реально наблюдаемой картиной явления.

PACS: 52.20.Hv, 52.25.Vy

1. ВВЕДЕНИЕ

В последние годы в связи с бурным развитием микроэлектроники и переходом производства на нанотехнологии исследования в области пылевой низкотемпературной плазмы вызывают широкий интерес и имеют большое практическое значение. Давно известно, что в большинстве промышленных установок, используемых в полупроводниковом производстве, как побочный эффект происходит рождение и рост частиц микронных и субмикронных размеров. Пылевые образования были найдены в установках по плазменному травлению [1, 2], химическому осаждению из газовой фазы [3, 4], а также в установках по осаждению методом распыления [5, 6]. Поскольку обычно макрочастицы в плазме приобретают значительные отрицательные заряды, они оказываются запертыми электростатическим полем и могут расти в течение продолжительного времени, пока разряд не будет выключен или они не будут выведены из области горения разряда под действием собствен-

ной силы тяжести. Уже сейчас современный уровень развития полупроводниковой технологии позволяет оперировать с объектами, имеющими размеры порядка 0.1 мкм, однако дальнейшее усложнение и миниатюризация электронных устройств требует размещения все большего числа элементов на кристалле, что невозможно осуществить без освоения области размеров в десятки нанометров. В этой связи появление пыли во время технологического цикла представляет собой серьезную проблему, так как макрочастицы размером 20–100 нм, попадая на подложку, могут привести к появлению фатального дефекта, резко снижая таким образом выход годных устройств.

Однако наряду с процессами, в которых наличие наночастиц приводит к нежелательным эффектам, существует широкая область задач, связанная с созданием материалов, обладающих специальными свойствами. Исследование и использование процессов рождения и роста частиц в плазме в этой связи представляет большой интерес, так как их свойства, такие как монодисперсность размеров, химический состав, могут быть хорошо контролируемы. Нано-

*E-mail: olevanov_m@mtu-net.ru

**E-mail: ymankelovich@mics.msu.su

частицы, синтезированные в плазме, применяются в производстве керамик [7], а в установках с магнетронным распылением получают порошки чистых металлов, сплавов и композитных материалов [8].

Необходимость понимания процессов роста пылевых частиц и создания механизмов контроля над этими процессами привела в последние годы к появлению большого числа экспериментальных работ в этой области. Активно исследовался процесс роста пылевых кластеров в силановой [9–19], германиевой [20, 21] и метановой [22, 23] плазме, где в качестве основного газа обычно использовались аргон и гелий. Параметры экспериментов были типичными для условий, имеющих место в установках для химического осаждения пленок: содержание SiH_4 , GeH_4 , CH_4 варьировалось в пределах 5–15%, давление в реакторе 10–80 Па, вкладываемая в разряд мощность 10–100 Вт, частота 3.5–28 МГц. Динамика роста пылевых частиц исследовалась также в экспериментах, в которых исходное вещество для образования кластеров получалось при распылении подложки. При этом эксперименты проводились с различными материалами (медь, алюминий, графит, вольфрам, титан и др.) [24–26]. Помимо исследования самой динамики образования кластеров осуществлялся поиск факторов и параметров, оказывающих наиболее сильное влияние на скорость роста частиц. Изучалось влияние газового потока [27, 28], градиента температуры и частотной модуляции разряда [29] на процесс образования пыли. В этих экспериментах было продемонстрировано, что специальным подбором условий можно добиться заметного подавления процесса образования кластеров.

Обобщение результатов экспериментов дает следующую картину процесса образования и роста пылевых частиц. Он, как правило, происходит в три этапа: фаза начального роста, фаза коагуляции и фаза насыщения. На первом этапе происходит равномерный рост частиц до размеров порядка 10 нм. Они имеют практически правильную сферическую форму и имеют узкое распределение по размерам. На стадии коагуляции наблюдается быстрое увеличение скорости роста пылевых частиц, связанное с тем, что резко возрастает вероятность столкновений между самими частицами. Форма и топология поверхности пылинок, образующихся на этой стадии, может быть совершенно различной: как сферической [22, 30], так и фрактальной, образованной из связанных цепочек исходных кристаллитов [13, 21]. На этапе насыщения коагуляция практически прекращается, и частицы продолжают расти очень медленно за счет депозиции материала из газовой фазы.

В целом характерное время образования кластеров может варьироваться от долей секунды до нескольких часов в зависимости от условий конкретного эксперимента, однако, в среднем скорость роста пыли оказывается значительно выше, чем скорость роста пленок из газовой фазы. Для сравнения можно привести данные из работы [21], где скорость роста пыли достигала 100–800 нм/с, в то время как характерная скорость осаждения пленок составляет всего 0.064–0.12 нм/с [17].

Наряду с экспериментальными исследованиями также проводились и активные теоретические изыскания, направленные на то, чтобы предложить адекватное объяснение механизма быстрого роста кластеров. Начальная стадия образования зародышей пылевых частиц из газовой фазы в силане была детально изучена в работах [17, 31–35]. Авторами были рассмотрены последовательности химических реакций, ведущие в результате к образованию кластеров вида $[\text{Si}_n\text{H}_x]$, при этом кластеры с $n \geq 10$ считались сформировавшимися частицами, дальнейший рост которых происходил посредством осаждения радикалов из газовой фазы [36, 37].

Стадия коагуляции пылевых частиц наступает по достижении ими некоторого критического размера обычно 2–10 нм, и, несмотря на то что динамика процесса хорошо изучена экспериментально, механизм этого явления во многом остается непонятным и по сей день. Основной вопрос, на который пытались дать ответ многие исследователи, — как может идти активный рост пылевых частиц при наличии накопленных ими значительных одноименных зарядов. Согласно приближению ограниченных орбит [38] сечение столкновения таких частиц должно быть экспоненциально мало. В литературе предлагается несколько моделей, решающих эту проблему. Первая баллистическая модель предполагает, что коагуляция пылевых частиц в кластеры происходит за счет столкновения заряженной и незаряженной пылинок [32, 39] или при столкновении между слабо заряженными частицами [40–42]. Аргументом в пользу этого предположения является то, что на начальной стадии коагуляции концентрация пыли обычно превышает концентрацию ионов и электронов в плазме, что, согласно условию квазинейтральности, ведет к тому, что большая часть макрочастиц оказывается незаряженной. Данная модель может объяснить наступление фазы насыщения и остановки коагуляции. При этом концентрация пыли падает ниже концентрации ионов в объеме, в результате чего практически все макрочастицы оказываются заряженными, что и является причиной остановки

процесса. Однако существование исходного критического размера макрочастиц, ниже которого коагуляция не идет, в рамках этой модели остается непонятным. Кроме того, как неоднократно указывалось многими авторами [15, 21], частота столкновений, соответствующая тепловому сечению взаимодействия между пылинками, не может объяснить столь высокую скорость роста кластеров, которая наблюдается экспериментально. Таким образом, мы приходим к необходимости существования дополнительного притяжения между частицами.

Аномально высокую скорость коагуляции можно объяснить в предположении, что некоторая часть пылевых частиц оказывается заряженной положительно и столкновения происходят в основном между частицами, несущими заряды разного знака. Авторы этой модели указывают на то, что, поскольку на начальной стадии коагуляции средний заряд пылевых частиц мал и испытывает флуктуации около нулевого значения, а столкновение пылинок с высокоэнергетичными электронами может приводить к вторичной электронной эмиссии с их поверхности, положительный заряд действительно в течение части времени присутствует на любой макрочастице [13, 43]. Однако плодотворность данной гипотезы вызывает большие сомнения, поскольку наличие в объеме достаточного числа высокоэнергетичных электронов, способных обеспечить необходимую концентрацию макрочастиц с положительным зарядом, скорее всего потребует создания специальных условий. Между тем, как показывает практика, рост пылевых образований активно протекает в самых обычных ситуациях.

Помимо этого нужно еще учесть, что правильнее было бы рассматривать не общее содержание положительно заряженной пыли в объеме, а эволюцию заряда на отдельно взятой макрочастице. Характерное время флуктуации заряда пылинки обычно оказывается значительно меньше, чем время, за которое она успеет столкнуться с другой частицей. Так как время зарядки в основном определяется столкновениями с электронами, то для оценки можно написать $\tau_e/\tau_d \sim n_d v_d / n_e v_e$, где n_e, n_d — концентрации электронов и макрочастиц, а v_e, v_d — их тепловые скорости. Для кремниевых частиц размером 10 нм при комнатной температуре $v_d \sim 10^2$ см/с; скорость электронов при температуре $T_e \sim 3$ эВ, характерной для большинства экспериментов, составляет $v_e \sim 10^8$ см/с. Поскольку при данных условиях $v_d/v_e \sim 10^{-5}-10^{-6}$, а отношение концентраций n_d/n_e в подавляющем большинстве случаев не превышает 10^2-10^3 , получаем, что $\tau_e/\tau_d \ll 1$. Это озна-

чает, что при рассмотрении парного межчастичного взаимодействия мы должны ориентироваться на средний, а не на мгновенный заряд частицы. Таким образом, нужно признать, что теоретическое описание процесса коагуляции, существующее на данный момент, не является удовлетворительным и нуждается в дальнейшем усовершенствовании.

В настоящей работе приведен теоретический расчет процесса образования и роста пылевых кластеров на основе поляризационной модели взаимодействия пылевых частиц, предложенной нами ранее [44]. Основная идея модели состоит в том, что будучи помещенной в электрическое поле, создаваемое соседней макрочастицей, пылевая частица поляризуется, что, в свою очередь, приводит к перераспределению ионных потоков вдоль ее поверхности. Эта асимметрия приводит к дополнительной силе, действующей на частицу в направлении вектора электрического поля. Основной отличительной чертой предложенной модели является то, что в этом случае сила со стороны плазменных потоков оказывается пропорциональной величине электрического поля, так же как и сила кулоновского отталкивания. Полученное нами выражение для силы, действующей на макрочастицы со стороны потока ионов, позволяет параметрически учитывать вклад плазмы при расчете парного взаимодействия. В зависимости от условий в системе этот вклад может оказаться определяющим и привести к эффективному притяжению между частицами.

Целью работы является построение теоретической модели роста макрочастиц в плазме, описывающей три фазы формирования кластеров, упомянутые выше, а также временную эволюцию функции распределения частиц по размерам и зависимость от времени концентрации пылевых частиц и их среднего размера. В качестве отправной точки для построения теории мы взяли полученную экспериментально картину явления из работы [13], представляющую собой наиболее типичный случай поведения системы. Приведем здесь вкратце основные параметры эксперимента [13] и основные этапы эволюции системы, которые при этом наблюдались. Эксперимент проводился в аргоновой плазме с 10% содержанием SiH_4 при давлении 13 Па. Разряд поддерживался электрическим полем с частотой 6.5 МГц, вкладываемая мощность составляла 40 Вт. В течение первых приблизительно 0.2 секунд с момента включения разряда частицы находились за пределами области разрешения используемых в эксперименте методов определения размеров (около 5 нм). Через 0.5 с, начиная с момента включения разряда, размер час-

тиц увеличился до 15 нм и началась коагуляция. После 1.0 с четко наблюдалось появление двух групп частиц с довольно узким распределением размеров. Группа частиц малого размера оставалась далее в тех же границах от 10 до 20 нм в течение всего последующего времени эксперимента от 0.5 до 4 с, в то время как их плотность упала от $1.5 \cdot 10^9 \text{ см}^{-3}$ через 0.5 с после включения разряда до $3 \cdot 10^8 \text{ см}^{-3}$ через 1.0 с с момента старта. Фотографии, сделанные с помощью электронного микроскопа, показывают, что частицы в первой группе имеют более-менее правильную сферическую форму, тогда как частицы из второй группы являются фрактальными образованиями, состоящими из слипшихся частиц размером 10–20 нм. Скорость их роста на начальном этапе была очень велика: средний размер достигал 75 нм через 1.2 секунды с момента начала эксперимента. Затем наступала стадия насыщения, и частицы продолжали расти медленнее: приблизительно до 110 нм к 4.0 с. Их концентрация при этом оставалась практически постоянной — на уровне $4 \cdot 10^7 \text{ см}^{-3}$.

Далее будем проводить все расчеты, используя приведенные выше данные. Этапы начального роста пылевых частиц и стадия коагуляции будут рассмотрены отдельно, при этом критерием перехода от одного режима роста кластеров к другому будет выступать достижение частицами некоторого критического размера, оценку которого мы также получим в нашей модели.

2. ЭТАП НАЧАЛЬНОГО РОСТА ПЫЛЕВЫХ ЧАСТИЦ

Основной особенностью эволюции системы на стадии начального роста является образование в объеме фракции пылевых частиц с приблизительно постоянной концентрацией, имеющих практически правильную сферическую форму и очень узкое распределение по размерам. Ниже мы приводим расчет скорости роста кластеров на данной стадии и оценку дисперсии пылевых частиц по размерам.

Упрощенно процесс начального роста кластеров можно подразделить на два параллельно протекающих подпроцесса. Первый описывает образование зародышей будущих частиц, а второй — их дальнейший рост за счет осаждения материала из плазмы. Предполагая форму частиц сферической, будем описывать эволюцию пылевой подсистемы, введя функцию распределения по объемам частиц $f(V, t)$, где $V = (4/3)\pi a^3$ — объем отдельной частицы, a — ее

радиус. Проведем нормировку функции распределения концентрации пыли в объеме:

$$n_d(t) = \int_0^{\infty} f(V, t) dV. \quad (1)$$

Тогда уравнение для функции распределения, описывающее рост частиц при осаждении материала из газовой фазы, можно записать в виде

$$\frac{\partial f(V, t)}{\partial t} = \nu_0(V - u_0)f(V - u_0, t) - \nu_0(V)f(V, t). \quad (2)$$

В приведенном выражении ν_0 — частота столкновений пылевой частицы с радикалами и атомами газа, u_0 — величина прироста объема макрочастицы за счет присоединения ею одной частицы из газовой фазы. Далее будем оценивать эту величину, как объем самой присоединяемой молекулы.

Частоту столкновений оценим как

$$\nu_0 \approx \pi a^2 n_a \bar{v}_a, \quad (3)$$

где \bar{v}_a — средняя тепловая скорость активных радикалов, n_a — их концентрация. При этом будем предполагать, что вероятность прилипания налетающего атома к поверхности пылевой частицы при их столкновении равна единице. Как было показано в ряде работ [17, 19], в случае силановой плазмы основной частицей, ответственной за рост кластеров из газовой фазы, является нейтральный радикал SiH_2 .

Учитывая, что прирост объема макрочастицы при присоединении ею одной молекулы из газа намного меньше ее собственного объема, можно переписать уравнение (2) в дифференциальной форме:

$$\frac{\partial f(V, t)}{\partial t} = -u_0 \frac{\partial \nu_0(V) f(V, t)}{\partial V}. \quad (4)$$

Дополнив полученное уравнение начальными и граничными условиями:

$$\begin{aligned} f(V, t = 0) &= 0, \\ \frac{\partial f(V_0, t)}{\partial t} &= \frac{k(t)}{u_0} - \nu_0(V_0) f(V_0, t), \end{aligned} \quad (5)$$

получим полностью определенную задачу относительно функции распределения, которую требуется найти. В последнем выражении $k(t)$ представляет собой скорость образования зародышей будущих макрочастиц, имеющих начальный объем $V_0 \gg u_0$.

Уравнение (4) легко решается при помощи преобразования Лапласа, и его решение записывается в виде

$$f(V, t) = \frac{\nu_0(V_0)}{\nu_0(V)} f_0(t - b) \eta(t - b), \quad (6)$$

где

$$f_0(t) = \frac{1}{u_0} \int_0^t k(t') \exp(\nu_0(V_0)(t' - t)) dt'. \quad (7)$$

В выражении (6) функция Хевисайда

$$\eta(t) = \begin{cases} 1, & t \geq 0, \\ 0, & t < 0, \end{cases} \quad (8)$$

а b представляет собой время до появления частиц заданного размера:

$$b = \frac{1}{u_0} \int_{V_0}^V \frac{dV}{\nu_0(V)}. \quad (9)$$

Для вычисления скорости роста кластеров нам потребуется перейти от функции распределения по объемам макрочастиц к функции их распределения по размерам, полагая при этом, что все частицы имеют сферическую форму и $dV = 4\pi a^2 da$. Тогда (6) преобразуется к виду

$$f(a, t) = 4\pi a_0^2 f_0(t - b) \eta(t - b), \quad (10)$$

где через a_0 обозначен радиус зародыша. Подставив (3) в (9) и проинтегрировав по размерам, получим следующее выражение для времени запаздывания:

$$b(a) = \frac{4}{\bar{v}_a n_a u_0} (a - a_0). \quad (11)$$

Как видно из выражения для функции распределения (10), характер ее эволюции во времени представляет собой распространение некоторой волны в пространстве размеров макрочастиц. При этом для любого момента времени форма кривой в пространстве размеров частиц не изменяется, а сама кривая смещается в сторону больших размеров с постоянной скоростью c_f :

$$c_f = \frac{\bar{v}_a n_a u_0}{4}. \quad (12)$$

Из выражения (10) видно, что вид функции распределения макрочастиц по размерам для любого момента времени полностью определяется временной зависимостью скорости производства зародышей. Этот процесс представляет собой сложную последовательность, состоящую из десятков химических реакций [32, 33], и определение его временных характеристик является самостоятельной и сложной задачей. Для нахождения вида функции распределения в нашем случае и для проведения дальнейших

оценок мы рассмотрим этот процесс в упрощенном виде.

Пусть в основе процесса образования зародышей макрочастиц лежит единственная реакция, в которой принимают участие активные радикалы одного вида и молекулы исходного газа. Обозначим концентрацию радикалов, как и ранее, n_a , а молекул исходного газа — n_0 . Если в качестве основного механизма образования радикалов принять диссоциацию молекул исходного газа, вызванную электронным ударом, то скорость производства радикалов запишется в виде $c = k_e n_e n_0$. Гибель образовавшихся радикалов будет контролироваться двумя процессами — реакцией с частицами исходного газа с последующим образованием зародышей будущих макрочастиц и прилипанием к уже существующим в объеме пылевым частицам. Предполагая, что стационарное состояние наступает достаточно быстро, запишем уравнение равновесия реакций:

$$k_0 n_a n_0 + k_d n_a n_d = k_e n_e n_0, \quad (13)$$

где введены обозначения: k_0 — константа скорости реакции образования центров, k_d — константа скорости гибели на поверхности существующих пылевых частиц, n_d — концентрация пыли.

Из выражения (13) видно, что процессы рождения пылевых центров и осаждения материала на уже существующих зародышах конкурируют между собой. На начальной стадии процесса, когда содержание пыли в объеме невелико, основным механизмом ухода активных радикалов будет процесс рождения центров, однако с течением времени по мере роста концентрации зародышей и увеличения площади их поверхности этот процесс должен уступить место гибели молекул на пылевых частицах. При этом процесс образования новых центров роста в объеме практически полностью остановится. Критерием перехода от одного режима к другому может служить выполнение следующего условия:

$$k_0 n_0 \sim k_d n_d. \quad (14)$$

Оценим время, за которое произойдет переход от первого режима ко второму. Скорость рождения центров определяется соотношением $k(t) = k_0 n_a n_0$. Выражая из (13) n_a , и подставляя его в последнее выражение, получим

$$\frac{dn_d}{dt} = \frac{k_e n_e n_0}{1 + k_d n_d / k_0 n_0}. \quad (15)$$

Поскольку на этапе образования зародышей $k_0 n_0 \gg k_d n_d$, размер пылевых частиц остается практически неизменным, а вместе с ним и константа

скорости гибели радикалов на макрочастицах, k_d . В этом случае решение уравнения (15) записывается в виде

$$n_d = \frac{k_0 n_0}{k_d} \left(\sqrt{1 + 2 \frac{k_d k_e n_e t}{k_0}} - 1 \right). \quad (16)$$

Используя (16) и условие (14), оценим время, по истечение которого процесс образования зародышей практически прекращается:

$$\tau \approx \frac{k_0}{k_d k_e n_e}. \quad (17)$$

Для проведения оценок примем следующие параметры: $T_e = 2.5$ эВ, $T_a = 0.025$ эВ — температура газа, которая предполагается комнатной, $n_e \sim 1 \cdot 10^9$ см⁻³, $a_a \sim 2.5$ Å — характерный размер молекул исходного газа и активных радикалов. Согласно [33] типичный центр образования частиц представляет собой кластер вида $[\text{Si}_n\text{H}_x]$, где $n \sim 10$. Оценим его размер, как $10^{1/3} a_a \approx 5.4$ Å. Приведенным выше температурам соответствуют тепловые скорости $\bar{v}_e = 9.3 \cdot 10^7$ см/с и $\bar{v}_a = 4 \cdot 10^4$ см/с, поэтому, используя выражение для констант взаимодействия $k = \pi a^2 \bar{v}$, получим $k_0 \approx 7.9 \cdot 10^{-11}$ см³/с, $k_d \approx 3.6 \cdot 10^{-10}$ см³/с, $k_e \approx 1.8 \cdot 10^{-7}$ см³/с. Подставляя все параметры в (17), запишем оценку для времени образования центров: $\tau \approx 1.2 \cdot 10^{-3}$ с.

Оценим теперь скорость роста макрочастиц за счет осаждения активных радикалов из газовой фазы. Это не что иное, как полученная нами ранее скорость дрейфа функции распределения в пространстве размеров частиц c_f (см. (12)). Концентрацию радикалов можно получить из выражения (13). На начальном этапе формирования зародышей для нее справедлива оценка

$$n_a \sim \frac{k_e n_e}{k_0} = 2.3 \cdot 10^{12} \text{ см}^{-3}.$$

Изменение объема макрочастицы при присоединении к ней радикала оценим как

$$u_0 \sim \frac{4}{3} \pi a_a^3 = 6.5 \cdot 10^{-23} \text{ см}^3.$$

Тогда для скорости роста получим $c_f \approx 15$ нм/с. Данная оценка на самом деле является оценкой сверху, так как при расчете этой величины предполагалось, что концентрация радикалов в единице объема остается постоянной. Однако по мере увеличения размеров пылевых частиц и, соответственно, константы скорости прилипания, концентрация радикалов будет убывать, что приведет в конечном итоге

к уменьшению скорости осаждения материала и к замедлению дальнейшего роста кластеров.

Интенсивное образование зародышей происходит лишь в течение короткого времени, после чего их концентрация меняется очень слабо, поэтому ширину функции распределения макрочастиц по размерам можно оценить, как $\Delta a \sim c_f \tau \approx 0.02$ нм.

Резюмируя результаты проделанных рассуждений, мы приходим к следующей картине процесса начального роста кластеров: на этом этапе в течение короткого времени порядка 10^{-3} с образуются зародыши будущих частиц, после чего их концентрация перестает меняться и начинается увеличение их размера. Этот рост протекает с приблизительно постоянной скоростью 10–15 нм/с. Из-за того что зародыши образуются лишь в течение очень короткого времени, распределение частиц по размерам оказывается практически монодисперсным. Предложенная нами модель полностью согласуется с данными экспериментов (см. Введение) как на качественном уровне, так и количественно. В следующем разделе мы рассмотрим стадию коагуляции пылевых частиц.

3. ЧАСТОТА КОАГУЛЯЦИИ ПЫЛЕВЫХ ЧАСТИЦ В ПРИБЛИЖЕНИИ ПОЛЯРИЗАЦИОННОГО ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ

Расчет силы, действующей на пылевую частицу в электрическом поле, с учетом ее поляризации был проведен нами в работе [44]. Выпишем лишь результирующее выражение:

$$F_d = Z_d e E_0 \left(\frac{Z_i \tilde{n}_i}{Z_d n_d} \frac{a^2}{a^2} \frac{\frac{3}{2} + \frac{n_0 \sigma_0}{n_d \pi a^2} \Phi(\xi)}{1 + \frac{n_0 \sigma_0}{n_d \pi a^2}} - 1 \right). \quad (18)$$

Здесь Z_d — заряд пылинки, E_0 — электрическое поле, Z_i — заряд ионов; \tilde{n}_i — концентрация ионов непосредственно у поверхности макрочастиц, n_d — концентрация пыли, n_0 — концентрация атомов нейтрального газа, σ_0 — сечение взаимодействия ионов с атомами нейтрального газа, a^2 — средний квадрат размера макрочастиц, a — радиус выбранной частицы,

$$\Phi(\xi) = \xi^2 [1 - 2\xi^2 + 2\sqrt{\pi}\xi^3 \exp(\xi^2) \text{erfc}(\xi)], \quad (19)$$

где

$$\xi^2 = \frac{Z_i e |\varphi_0|}{T_i} \frac{1}{1 + \frac{n_0 \sigma_0}{n_d \pi a^2}}. \quad (20)$$

В последнем соотношении T_i — температура ионов, φ_0 — потенциал на поверхности пылевой частицы. В том случае, когда макрочастица обладает сферической формой, потенциал на ее поверхности связан с размером частицы следующим соотношением:

$$e|\varphi_0| = \frac{Z_d e^2}{a}. \quad (21)$$

Рассмотрим далее две пылевые частицы с размерами a_1 и a_2 , которые взаимодействуют друг с другом с силами \mathbf{f}_{12} и \mathbf{f}_{21} , где \mathbf{f}_{12} — сила, с которой вторая частица действует на первую, а \mathbf{f}_{21} — сила, с которой первая действует на вторую. В качестве выражения для силы возьмем (18), в котором электрическое поле будет создаваться зарядом соседней частицы. В результате получим систему двух частиц с парным центральным взаимодействием, в котором присутствие плазмы учитывается параметрически. Далее будем решать задачу рассеяния двух частиц друг на друге в такой системе.

Однако следует отметить, что, несмотря на заметное сходство с обычной задачей, рассматривающей парное взаимодействие двух частиц, задача о взаимодействии пылевых частиц в плазме имеет важное отличие. С учетом ионных потоков для сил взаимодействия не должен выполняться третий закон Ньютона, т. е. в общем случае для частиц разного размера $\mathbf{f}_{12} \neq -\mathbf{f}_{21}$. Этот вывод не удивителен, так как наличие плазмы делает систему незамкнутой. В результате возможны такие ситуации, когда одна из частиц «убегает» от второй (ее размер таков, что электростатическое отталкивание превышает силу со стороны потока ионов), а вторая ее «догоняет». Как следствие этого процесса происходит перекачка энергии от плазмы в пылевую подсистему, сопровождающаяся ее разогревом. Эффект разогрева пылевой подсистемы действительно наблюдался экспериментально [45, 46].

Введем обозначение для радиус-вектора, соединяющего первую и вторую частицу, $\mathbf{r} = \mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_1$, где \mathbf{r}_1 и \mathbf{r}_2 — радиус-векторы первой и второй частиц в неподвижной системе координат. Тогда его изменение во времени будет описываться уравнением

$$\ddot{\mathbf{r}} = \frac{\mathbf{f}_{21}}{m_2} - \frac{\mathbf{f}_{12}}{m_1}. \quad (22)$$

Подставляя в (22) выражения для сил, получим

$$\ddot{\mathbf{r}} = -\frac{1}{\mu} \times \left\{ \frac{Z_i}{n_d a^2} \left(\frac{\tilde{n}_{i1} a_1^2}{Z_{d1}} \frac{m_2}{m_1 + m_2} \frac{\frac{3}{2} + \frac{n_0 \sigma_0}{n_d \pi a^2} \Phi(\xi_1)}{1 + \frac{n_0 \sigma_0}{n_d \pi a^2}} + \frac{\tilde{n}_{i2} a_2^2}{Z_{d2}} \frac{m_1}{m_1 + m_2} \frac{\frac{3}{2} + \frac{n_0 \sigma_0}{n_d \pi a^2} \Phi(\xi_2)}{1 + \frac{n_0 \sigma_0}{n_d \pi a^2}} \right) - 1 \right\} \mathbf{f}_{e.s.}, \quad (23)$$

где индексами обозначены параметры, относящиеся, соответственно, к первой и второй частицам,

$$\mu = \frac{m_1 m_2}{m_1 + m_2}$$

— приведенная масса, $\mathbf{f}_{e.s.}$ — сила электростатического отталкивания, которая действовала бы между двумя частицами в отсутствие плазмы.

Таким образом, мы получаем, что исходная задача эквивалентна задаче о движении частицы с массой μ в центрально-симметричном поле с потенциальной энергией взаимодействия $U(r)$:

$$U(r) = - \left\{ \frac{Z_i}{n_d a^2} \left(\frac{\tilde{n}_{i1} a_1^2}{Z_{d1}} \frac{m_2}{m_1 + m_2} \frac{\frac{3}{2} + \frac{n_0 \sigma_0}{n_d \pi a^2} \Phi(\xi_1)}{1 + \frac{n_0 \sigma_0}{n_d \pi a^2}} + \frac{\tilde{n}_{i2} a_2^2}{Z_{d2}} \frac{m_1}{m_1 + m_2} \frac{\frac{3}{2} + \frac{n_0 \sigma_0}{n_d \pi a^2} \Phi(\xi_2)}{1 + \frac{n_0 \sigma_0}{n_d \pi a^2}} \right) - 1 \right\} U_{e.s.}, \quad (24)$$

где $U_{e.s.}(r)$ — энергия электростатического отталкивания пылинки.

Задача о движении макрочастицы в поле неподвижного центра с заданным центрально-симметричным потенциалом легко решается, и сечение столкновений в этом случае имеет вид

$$\sigma_{dd} = \pi R_{min}^2 \left(1 + \frac{2U(R_{min})}{\mu v^2} \right), \quad (25)$$

где R_{min} — минимальное расстояние, на которое частица может сблизиться с центром и по достижении которого происходит столкновение, v — относительная скорость.

В случае сферических частиц $R_{min} = a_1 + a_2$, $m_1, m_2 \sim a_1^3, a_2^3$, а $U_{e.s.}$ дается выражением

$$U_{e.s.}(R_{min}) = \frac{Z_{d1} Z_{d2} e^2}{a_1 + a_2}.$$

В дальнейших рассуждениях примем также, что в среднем потенциал на поверхности всех частиц одинаков: $\varphi_0 = \text{const}$. Этот вывод следует из того, что макрочастицы находятся в проводящей среде и разность потенциалов была бы быстро скомпенсирована возникшими в ней токами. Тогда для $U_{e.s.}$ можно записать:

$$U_{e.s.}(a_1 + a_2) = \varphi_0^2 \frac{a_1 a_2}{a_1 + a_2}. \quad (26)$$

Концентрации ионов в окрестности макрочастиц, \tilde{n}_{i1} , \tilde{n}_{i2} , определяются потенциалом на поверхности пылинок, а также размерами частиц и условиями, имеющими место в плазме. Величина концентраций при этом может сильно варьироваться в зависимости от реализуемой ситуации. Основные два фактора, которые влияют на вид функции распределения ионов — это поглощение ионов на поверхности макрочастицы и соотношение размеров пылинок a с длиной свободного пробега ионов в плазме λ_i . Первый из этих двух факторов является существенным для частиц большого размера, так как при $a \gtrsim \lambda_i$ время жизни ионов в окрестности макрочастицы резко сокращается, что ведет к заметному уменьшению их концентрации по сравнению со случаем, когда поглощение на поверхности отсутствует. Данная ситуация соответствует гидродинамическому пределу. Однако в условиях экспериментов, в которых изучается рост частиц из газовой фазы, типичным является обратный случай, для которого справедливой оценкой \tilde{n}_i может служить больцмановская экспонента:

$$\tilde{n}_i \approx n_i \exp \frac{Z_i e |\varphi_0|}{T_i}, \quad (27)$$

где n_i — среднееобъемное значение концентрации ионов.

Тогда для сечения взаимодействия окончательно получим:

$$\sigma_{a_1 a_2} = \pi(a_1 + a_2)^2 \left\{ 1 + \frac{2U_{e.s.}(a_1 + a_2)}{\mu v^2} \times \left(\frac{Z_i e n_i \exp(Z_i e |\varphi_0| / T_i)}{n_d a^2 |\varphi_0|} \frac{a_1 a_2 (a_1^2 + a_2^2)}{a_1^3 + a_2^3} \times \left(\frac{\frac{3}{2} + \frac{n_0 \sigma_0}{n_d \pi a^2} \Phi(\xi)}{1 + \frac{n_0 \sigma_0}{n_d \pi a^2}} - 1 \right) \right) \right\}. \quad (28)$$

Введем далее параметр

$$\chi = \frac{Z_i e n_i \exp(Z_i e |\varphi_0| / T_i)}{n_d a^2 |\varphi_0|} \times \frac{a_1 a_2 (a_1^2 + a_2^2)}{a_1^3 + a_2^3} \frac{\frac{3}{2} + \frac{n_0 \sigma_0}{n_d \pi a^2} \Phi(\xi)}{1 + \frac{n_0 \sigma_0}{n_d \pi a^2}} - 1, \quad (29)$$

который определяет знак взаимодействия двух макрочастиц. При $\chi > 0$ частицы притягиваются, при $\chi < 0$ отталкиваются. Обозначим также $\sigma_T = \pi(a_1 + a_2)^2$ сечение взаимодействия незаряженных частиц.

Вычислим теперь константу скорости взаимодействия макрочастиц разных размеров:

$$k_{a_1 a_2} = \langle \sigma_{a_1 a_2}(v) v \rangle. \quad (30)$$

В приведенном выражении усреднение ведется по относительным скоростям частиц. Предположим, что распределение макрочастиц по скоростям является максвелловским с температурой T_0 , равной температуре газа, и рассмотрим отдельно два случая: $\chi \geq 0$ и $\chi < 0$.

В случае $\chi \geq 0$, который соответствует притяжению частиц,

$$k_{a_1 a_2} = \left(\frac{\mu}{2\pi T_0} \right)^{3/2} \sigma_T \int_0^\infty v \left(1 + \frac{2U_{e.s.}\chi}{\mu v^2} \right) \times \exp \left(-\frac{\mu v^2}{2T_0} \right) 4\pi v^2 dv. \quad (31)$$

Проинтегрировав (31), будем иметь:

$$k_{a_1 a_2} = 2\bar{v}\sigma_T \left(1 + \frac{U_{e.s.}\chi}{T_0} \right), \quad (32)$$

где \bar{v} — средняя относительная скорость пылевых частиц.

Для случая отталкивания между частицами ($\chi < 0$) запишем

$$k_{a_1 a_2} = \left(\frac{\mu}{2\pi T_0} \right)^{3/2} \sigma_T \int_{v_{min}}^\infty v \left(1 - \frac{2U_{e.s.}|\chi|}{\mu v^2} \right) \times \exp \left(-\frac{\mu v^2}{2T_0} \right) 4\pi v^2 dv, \quad (33)$$

где $v_{min} = \sqrt{2U_{e.s.}|\chi|/\mu}$ — минимальная относительная скорость пылинок, при которой возможно

столкновение. Проведя интегрирование, как и в предыдущем случае, получим

$$k_{a_1 a_2} = 2\bar{v}\sigma_T \exp\left(-\frac{U_{e.s.}}{T_0}|\chi|\right). \quad (34)$$

Проанализируем теперь полученные результаты и рассмотрим сначала выражение для χ . Для оценок возьмем концентрацию нейтрального газа $n_0 = 3.25 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-3}$, что соответствует давлению $P = 13 \text{ Па}$, концентрацию пыли примем равной $n_d = 1.5 \cdot 10^9 \text{ см}^{-3}$, сечение взаимодействия ионов с атомами нейтрального газа оценим из следующих соображений. Основными ионами в смеси Ar и SiH_4 являются ионы SiH_x^+ вследствие более низкого потенциала ионизации силана и нерезонансной перезарядки ионов аргона на SiH_x . Взаимодействие SiH_x^+ с частицами нейтрального газа носит поляризационный характер, и оценка дает для сечения взаимодействия величину $\sigma_0 \approx 0.5 \cdot 10^{-14} \text{ см}^2$. Ее мы и будем использовать для дальнейших расчетов. В этом случае соотношение

$$\frac{n_0\sigma_0}{n_d\pi a^2} \gg 1$$

хорошо выполняется вплоть до среднеквадратичных размеров макрочастиц $a \sim 0.8 \text{ мкм}$. Тогда получим

$$\xi^2 \approx \frac{Z_i e |\varphi_0|}{T_i} \frac{n_d \pi a^2}{n_0 \sigma_0}. \quad (35)$$

Рассмотрим теперь отношение $Z_i e |\varphi_0| / T_i$. Исходная модель, построенная нами для описания взаимодействия между пылевыми частицами, предполагает, что для ионов справедливо максвелловское распределение по скоростям, которое характеризуется равновесной температурой T_i . Однако в обсуждаемом в настоящей работе случае размеры пылевых частиц намного меньше характерной длины свободного пробега ионов в плазме $a \ll \lambda_i$. Это приводит к тому, что ионы в промежутках между столкновениями с атомами нейтрального газа большую часть времени проводят, двигаясь по финитным траекториям в поле макрочастиц. Таким образом, распределение ионов по скоростям не может считаться равновесным, и их средняя кинетическая энергия в окрестности макрочастиц оказывается значительно выше, чем в окружающем газе. В нашей модели мы учтем последнее обстоятельство с помощью введения корректировки для параметра температуры ионов, считая при этом, что в среднем увеличение кинетической энергии ионов пропорционально энергии, набираемой ими в поле макрочастиц. Такое допущение подтверждается проведенными нами ранее

расчетами по методу молекулярной динамики [47], хотя, безусловно, оно является вынужденным и связано с тем, что точное аналитическое выражение для функции распределения ионов в рассматриваемой области параметров, по-видимому, отсутствует. Таким образом, примем, что

$$T_i \approx \zeta Z_i e |\varphi_0|, \quad (36)$$

где ζ — безразмерный параметр, $\zeta \lesssim 1$. Возвращаясь к выражению (35) и полагая температуру нейтрального газа равной комнатной $T_0 = 0.025 \text{ эВ}$, получим, что в интересующем нас интервале размеров частиц, 10–100 нм, с концентрациями $n_d \sim 1 \cdot 10^9 \text{ см}^{-3}$, как правило, всегда справедливо неравенство $\xi^2 \ll 1$.

При малых значениях ξ асимптотическое поведение функции $\Phi(\xi)$ имеет вид

$$\Phi(\xi) \sim \xi^2. \quad (37)$$

Тогда подстановка (37) в (29) с учетом (35) и (36), а также условия $n_0\sigma_0/n_d\pi a^2 \gg 1$ дают

$$\chi = \frac{Z_i e \pi n_i}{n_0 \sigma_0 |\varphi_0|} \frac{a_1 a_2 (a_1^2 + a_2^2)}{a_1^3 + a_2^3} \frac{\exp(1/\zeta)}{\zeta} - 1. \quad (38)$$

Рассмотрим зависимость параметра χ от размеров взаимодействующих частиц. Пусть для определенности a_1 — размер меньшей частицы, a_2 — размер большей частицы. Обозначим через α их отношение: $\alpha = a_2/a_1 \geq 1$. Тогда часть выражения (38), зависящая от размеров, переписится в виде

$$\frac{a_1 a_2 (a_1^2 + a_2^2)}{a_1^3 + a_2^3} = a_1 f(\alpha) = a_1 \frac{\alpha (1 + \alpha^2)}{1 + \alpha^3}. \quad (39)$$

Область значений функции $f(\alpha)$, присутствующей в последнем выражении, находится в пределах $1 \leq f(\alpha) \lesssim 1.1$. Таким образом, мы получаем, что знак взаимодействия двух частиц разного размера практически полностью определяется размером меньшей частицы.

Рассмотрим теперь стадию роста частиц, предшествующую началу процесса их коагуляции. Как было показано в предыдущем разделе, на данном этапе эволюции системы распределение пылевых частиц по размерам имеет вид узкого пика, а их форма представляет собой правильную сферу. Концентрация макрочастиц в объеме остается практически постоянной, в то время как их размер равномерно увеличивается за счет осаждения радикалов из газовой фазы.

Определим, как ведет себя полученное выше сечение взаимодействия частиц по мере увеличения их

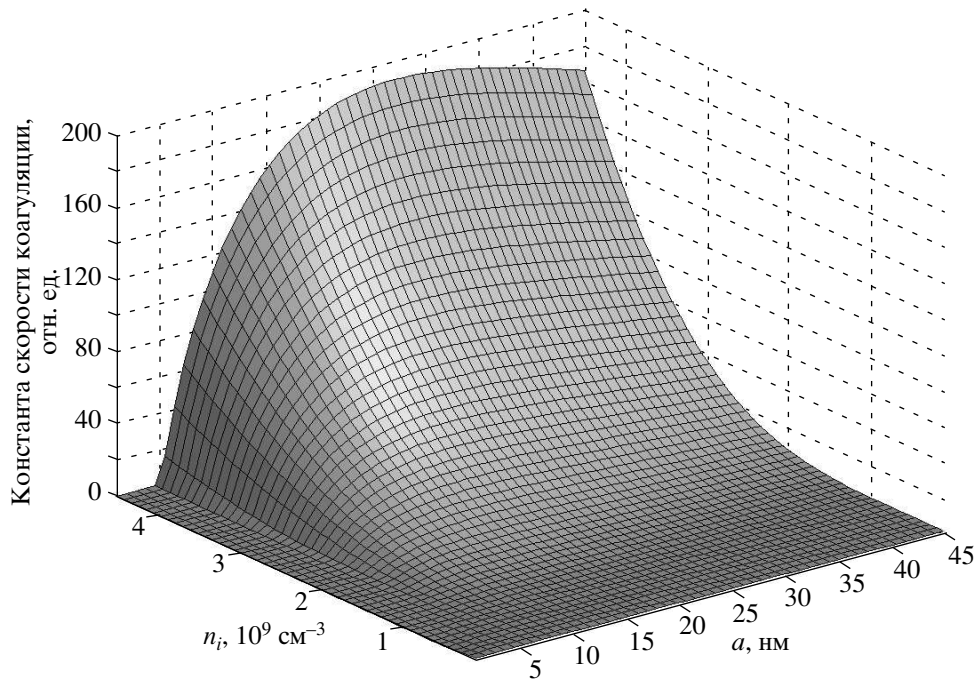


Рис. 1. Зависимость константы скорости коагуляции сферических частиц от их радиуса a и от концентрации ионов n_i . Константа скорости коагуляции выражена в единицах константы тепловых столкновений $k_T = 2\bar{v}\sigma_T$, где \bar{v} — средняя скорость относительного движения частиц, $\sigma_T = 2\pi a^2$ — сечение тепловых столкновений

размера. Для нахождения потенциала на поверхности макрочастиц воспользуемся выражением (21), а также соотношением квазинейтральности:

$$\bar{Z}_d n_d + n_e = Z_i n_i, \quad (40)$$

где \bar{Z}_d — средний заряд, накапливаемый макрочастицей. Учитывая, что распределение частиц по размерам очень узкое, можно заключить, что все они несут на себе практически одинаковые заряды, равные \bar{Z}_d . Введем также обозначение $P = n_e/n_i$. Тогда после всех преобразований получим

$$\chi \frac{U_{e.s.}}{T_0} = \left(\frac{Z_i n_i (1 - P)}{n_d} \right)^2 \frac{e^2 / 2a}{T_0} \left(\frac{a}{a_*} - 1 \right), \quad (41)$$

где также введено обозначение

$$a_* \approx \sqrt{\frac{n_0 \sigma_0 (1 - P)}{\pi n_d}} \sqrt{\zeta} \exp\left(-\frac{1}{2\zeta}\right). \quad (42)$$

В случае, когда содержание пыли в объеме велико и ее концентрация сопоставима с концентрациями носителей, что практически всегда имеет место для рассматриваемого круга задач, параметр $P \ll 1$, и в дальнейших расчетах мы его можем опустить.

Соотношение (41) представляет собой основной фактор, управляющий скоростью коагуляции пылевых частиц. Если радиус пылевых частиц оказывается меньше некоторого критического размера, который мы обозначили выше как a_* , то величина χ будет отрицательной и согласно (34) константа скорости взаимодействия окажется экспоненциально убывающей с ростом $U_{e.s.}/T_0$. Однако, как только размер частиц превысит критическое значение, скорость коагуляции возрастет очень резко в связи с тем, что энергия электростатического взаимодействия пылинок значительно превосходит энергию их теплового движения. На рис. 1 приводится зависимость от радиуса частицы и от концентрации ионов константы скорости коагуляции $k_{a_1 a_2}$ между пылевыми частицами, отнесенной к величине аналогичной константы скорости столкновений, вызванных одним лишь тепловым движением пылинок. По одной из осей отложен радиус частиц, по другой — концентрация ионов. Строя данную зависимость, мы предполагаем, что распределение частиц по размерам является моодисперсным, это характерно для начальной стадии коагуляции. Для проведения расчетов мы взяли указанные выше значения концентраций макрочастиц и атомов нейтрального газа,

а параметр ζ приняли равным 0.13. При этом для критического радиуса макрочастиц получаем оценку $a_* \approx 4.8$ нм. На рисунке видно, что по достижении частицами этого размера происходит быстрый рост сечения их взаимодействия.

Таким образом, можно сделать вывод, что переход от стадии начального роста пылевых частиц к стадии коагуляции является ярковыраженным пороговым процессом и данный результат находится в полном согласии с большим количеством экспериментально полученных описаний процесса.

Хочется также отметить еще одну особенность построенной нами модели. Как указывали многие исследователи, процесс коагуляции идет в условиях, когда концентрация пыли либо больше, либо приблизительно равна концентрации ионов. При этом основной причиной остановки процесса коагуляции до сих пор считалось накопление пылевыми частицами больших отрицательных зарядов, что, в свою очередь, приводит к усилению электростатического отталкивания между ними. Однако в рамках такого подхода объяснение высоких скоростей роста частиц при коагуляции вызывает серьезные затруднения. Между тем, в рамках нашей модели роль электростатического взаимодействия между макрочастицами оказывается прямо противоположной. Это связано с тем, что силы, действующие на частицы со стороны ионных потоков, так же как и силы электростатического отталкивания, оказываются пропорциональными величине электрического поля. На рис. 1 хорошо видно, что с ростом концентрации ионов, а это эквивалентно увеличению накопленного макрочастицами заряда, константа скорости коагуляции быстро возрастает. Этот вывод имеет экспериментальное подтверждение, состоящее в том, что наблюдается рост скорости коагуляции пылевых частиц при увеличении вкладываемой в разряд мощности, которая, в свою очередь, управляет скоростью ионизации в плазме [29].

В следующем разделе исследуем динамику роста пылевых частиц на стадии коагуляции с использованием полученных выше констант взаимодействия, а также обсудим вопрос о причинах остановки коагуляции на некотором этапе.

4. ДИНАМИКА ПЫЛЕВОЙ СИСТЕМЫ НА СТАДИИ КОАГУЛЯЦИИ

Итак, нами было получено, что начало процесса коагуляции между пылевыми частицами носит пороговый характер и наступает по достижении ими

некоторого критического размера. Для описания процесса введем, как и ранее, функцию распределения по объемам частиц, $f(v, t)$. Уравнение коагуляции, решением которого является $f(v, t)$, обычно записывается в виде

$$\frac{\partial f(V, t)}{\partial t} = -f(V, t) \int_0^\infty k_{VV'}(t) f(V', t) dV' + \frac{1}{2} \int_0^V k_{V'V-V'}(t) f(V', t) f(V - V', t) dV', \quad (43)$$

где первый член в правой части отражает уход частиц из заданного интервала размеров, а второй соответствует их приходу. Константа скорости коагуляции $k(t)$, входящая в подынтегральные выражения, дается соотношениями (32) и (34), в которых исходные параметры определяются выражениями (26), (29) и (36). Данная константа является функцией времени благодаря зависимости от времени интегральных величин, характеризующих свойства пылевой системы. К ним относятся потенциал на поверхности макрочастиц φ_0 и суммарная площадь их поверхности $n_d \pi a^2$, являющаяся мерой интенсивности взаимодействия пыли с ионной подсистемой. Вообще говоря, концентрация ионов в реальных условиях также может заметно меняться по мере роста пылевых кластеров и, в свою очередь, оказывать влияние на динамику рассматриваемого процесса. Однако при построении модели будем считать ее постоянной, поскольку иначе нам пришлось бы решать полную систему плазмо-химических уравнений, для чего потребовалось бы знание множества дополнительных деталей и конкретных экспериментальных условий.

Уравнение (43), описывающее динамику процесса коагуляции в интегральной форме, предполагает, что функция распределения пылевых частиц по размерам является непрерывной, а именно, что минимально возможное изменение размера частицы при столкновении намного меньше по сравнению с характерными размерами самих частиц. Поскольку в нашей задаче начальное распределение частиц очень узкое, шаг изменения их размера при столкновениях сравним с самим размером, в результате чего приведенный выше подход становится неприменимым. Тогда для корректного описания процесса нам потребуется переписать уравнение (43) в дискретном виде.

При коагуляции строительным материалом для образования кластеров являются частицы, имеющие практически одинаковый размер $V_0 = (4/3)\pi a_0^3$, где

$a_0 \sim a_*$, поэтому вместо непрерывной функции распределения $f(V, t)$ можно ввести дискретную последовательность концентраций кластеров разного размера f_n , где $n \geq 1$ отражает число исходных частиц, участвующих в образовании кластера. Тогда дискретный аналог уравнения (43) можно записать в виде:

$$\frac{df_n(t)}{dt} = -f_n(t) \sum_{i=1}^{\infty} k_{in}(t) f_i(t) + \frac{1}{2} \sum_{i=1}^{i < n} k_{in-i}(t) f_i(t) f_{n-i}(t). \quad (44)$$

В качестве начального условия примем, что в момент старта процесса коагуляции все частицы имели одинаковый размер и их концентрация была равна n_{d0} :

$$f_n(t=0) = \begin{cases} n_{d0}, & n = 1, \\ 0, & n > 1. \end{cases} \quad (45)$$

Формулы для константы скорости коагуляции, полученные в предыдущем разделе, описывают взаимодействие двух сферических частиц произвольного размера. Однако для расчета взаимодействия кластеров, образующихся при слипании микрочастиц, эти формулы становятся неприменимыми в том виде, в каком они были изначально записаны, и нуждаются в обобщении.

Пусть кластер состоит из некоторого числа n образующих его сферических микрочастиц объемом V_0 . Как показывает практика, топология поверхности данного образования может быть совершенно произвольной — как близкой к сферической, так и сильно фрактальной, состоящей из цепочек слипшихся микропылинок. Выпишем основные характеристики кластера в предельных ситуациях. В обоих случаях масса кластера определяется как сумма масс отдельных частиц, из которых он состоит, $m_n = nm_0$. В случае сферической топологии, плотной упаковки и достаточно больших n площадь поверхности $S_n \approx n^{2/3} S_0$, а размер кластера определяется как $a_n \approx n^{1/3} a_0$, где S_0 и a_0 — площадь поверхности и размер исходных кристаллитов. Тогда выражение для $k_{n_1 n_2}$ получается простой подстановкой в приведенные выше формулы значений $a_1 = n_1^{1/3} a_0$ и $a_2 = n_2^{1/3} a_0$.

Случай фрактальной топологии является более сложным и нуждается в отдельном рассмотрении. В качестве модели такой микрочастицы рассмотрим комбинацию некоторого числа n_c цепочек исходных

частиц, срастающихся в одной точке, которая является центром кластера. Общее число частиц в кластере по-прежнему равно n . Площадь поверхности кластера в этом случае близка к суммарной площади образующих его частиц $S_n \approx n S_0$. Из этого утверждения следует также дополнительный вывод, что при моделировании роста фрактальных образований интегральный параметр $n_d \pi a^2$ остается постоянным в течение всего процесса. На вопрос, что понимать под размером фрактальной частицы, однозначный ответ найти гораздо сложнее. Тем не менее для проведения расчетов этот параметр имеет огромное значение, так как с ним связана величина электрической емкости пылевого кластера. Вообще говоря, представление фрактального образования как точечного заряда при моделировании электростатических взаимодействий является довольно грубым приближением. Однако за неимением лучшего в нашей модели будем рассматривать кластеры в виде сферы с эффективным радиусом a_{eff} , который подбирается так, чтобы площадь соответствующей сферической поверхности была бы равна реальной площади поверхности кластера: $a_{eff} = n^{1/2} a_0$.

Следующая особенность фрактальных образований, которую необходимо принять во внимание при моделировании взаимодействия, — это резкое ослабление эффективности притяжения между ними по сравнению со сферическими частицами того же размера. Это связано с тем, что увлекающая сила со стороны ионных потоков, рассчитанная нами в сферической геометрии, пропорциональна площади поверхности частицы. В случае же фрактальных частиц, при условии, что их можно считать проводящими, накопленные ими заряды будут сконцентрированы на концах цепочек. Соответственно, ионные потоки будут оказывать направленное воздействие лишь на очень ограниченный участок поверхности кластера. Если кластер состоит из n_c цепочек при общем числе n образующих частиц, то его геометрический размер оценивается выражением $a \approx n/n_c a_0$. Площадь поверхности сферы, которая соответствует этому размеру, равна $S = 4\pi(n/n_c)^2 a_0^2$, в то время как эффективная площадь поверхности, дающая вклад во взаимодействие, оказывается гораздо меньше: $S_{eff} \approx 4\pi a_0^2 n_c$. В этом случае эффективность силы притяжения, действующей на кластер, изменится в γ раз:

$$\gamma = \frac{S_{eff}}{S} = \frac{n_c^3}{n^2}. \quad (46)$$

Для больших фрактальных образований число цепочек оказывается намного меньше, чем число образующих их микрочастиц. В результате параметр

$\gamma \ll 1$ и эффективность притяжения между большими частицами резко уменьшается. В этом случае сечение взаимодействия между ними будет определяться электростатическим отталкиванием. Мы приходим, таким образом, к выводу, что рост фрактальных кластеров может происходить только за счет присоединения к ним частиц наименьшего размера, т. е. тех, которые служат исходным строительным материалом на этапе коагуляции. С учетом того, что сила притяжения микрочастиц к кластеру пропорциональна величине электрического поля, и при условии, что заряды в кластере сосредоточены на концах цепочек, получим, что эти концы будут наиболее вероятным местом присоединения новых частиц. Это и является объяснением типичной картины образования подобных фрактальных структур, а именно, того факта, что в процессе роста фрактального кластера число цепочек остается практически постоянным, в то время как их длина быстро увеличивается.

Свойства материала микрочастиц, из которого образуются кластеры, играют, таким образом, ключевую роль при определении способа формирования макрочастиц на стадии коагуляции, и чем выше окажется проводимость материала, тем выше будет степень фрактальности растущих структур. В целом именно такая тенденция наблюдалась авторами ряда экспериментальных работ [24–26], в которых исследовался рост пылевых образований, материалом для которых служили разные вещества.

В случае, когда заряды на поверхности макрочастиц распределены равномерно и не скапливаются на малой площади, что характерно для непроводящих материалов, новые частицы присоединяются к кластеру в произвольном месте. При этом число цепочек постоянно растет и в пределе, соответствующем сферической топологии, это число имеет тот же порядок, что и число микрокристаллитов на поверхности кластера, $n_c \sim n^{2/3}$. Тогда, как и следовало ожидать, $\gamma \approx 1$.

В настоящей работе мы проводим численное моделирование процесса коагуляции, в котором происходит рост фрактальных структур, и в дальнейших расчетах мы полагаем, что число цепочек в кластере растет как n^κ , где $\kappa = 2/3$ при $n \leq 6$ и плавно стремится к нулю при больших n . Таким образом, мы учитываем, что эффективность сил притяжения, действующих на кластеры малого размера, сравнима с эффективностью взаимодействия частиц, имеющих сферическую форму.

С учетом изложенных выше соображений для модификации выражения (38) для χ для случая фрак-

тальных частиц нужно провести в нем следующую замену:

$$\frac{a_1 a_2 (a_1^2 + a_2^2)}{a_1^3 + a_2^3} \rightarrow a_0 \frac{n_{c1} n_1^{-1/2} n_2 + n_{c2} n_2^{-1/2} n_1}{n_1 + n_2}, \quad (47)$$

где a_0 — радиус исходных микрочастиц, из которых происходит рост кластеров; n_1, n_2 — число образующих взаимодействующие макрочастицы кристаллитов; n_{c1}, n_{c2} — число цепочек в первом и втором кластерах. Необходимо также внести изменения в выражение для $U_{e.s.}$:

$$U_{e.s.}(n_1 + n_2) = \varphi_0^2 a_0 \frac{n_1^{1/2} n_2^{1/2}}{n_1^{1/2} + n_2^{1/2}}. \quad (48)$$

Зависимость константы скорости коагуляции $k_{a_1 a_2}$ от размеров кластеров в начальный момент времени приведена на рис. 2. Для проведения расчетов мы приняли размер исходных частиц равным $a_0 = 7.5$ нм, что слегка превышает пороговое значение, а концентрацию ионов приблизительно равной концентрации пылевых частиц $n_i \approx 1.5 \cdot 10^9$ см⁻³. Из графика видно, что наиболее вероятными являются столкновения между частицами с наиболее различающимися размерами. Следствием этого является разделение пылевого облака на две группы частиц, первая из которых образована кристаллитами малого размера и приблизительно правильной формы, а вторая представляет собой разветвленные образования, растущие за счет присоединения частиц из первой группы. Эта характерная особенность функции распределения наблюдалась во многих экспериментах [9–21], и здесь необходимо отметить, что дисперсия размеров частиц в обеих группах будет тем уже, чем выше окажется селективность константы взаимодействия к отбору частиц именно различающихся размеров. Последнее утверждение носит общий характер и должно учитываться при построении моделей взаимодействия в пылевых облаках, отличных от принятой в настоящей работе.

Далее проводилось численное решение уравнения (44) с использованием простой явной схемы:

$$f_n(t + \tau) = \frac{f_n(t) + \frac{1}{2} \tau \sum_{i=1}^{i < n} k_{in-i}(t) f_i(t) f_{n-i}(t)}{1 + \tau \sum_{i=1}^{\infty} k_{in}(t) f_i(t)} \quad (49)$$

с адаптивным шагом по времени τ . Все средние величины, а также константы взаимодействия, которые

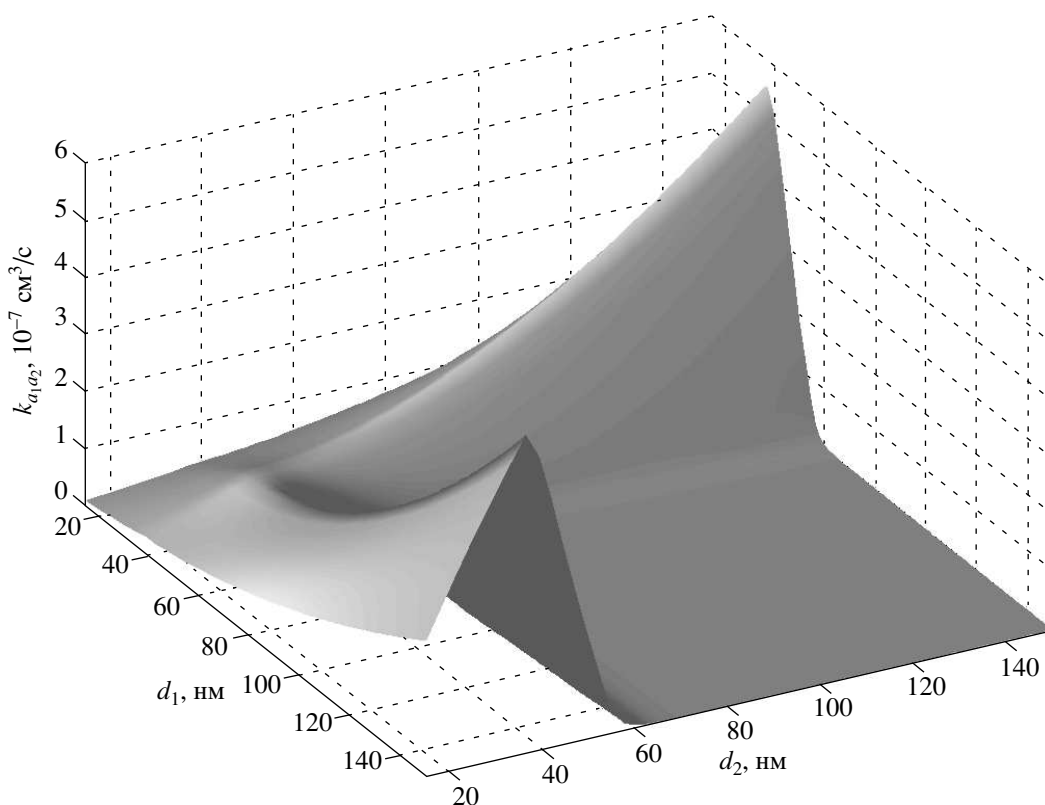


Рис. 2. Зависимость константы скорости коагуляции $k_{a_1 a_2}$ фрактальных частиц от их размеров d_1, d_2 . Под размером частицы понимается ее удвоенный эффективный радиус $d = 2a_{eff}$. График соответствует моменту старта процесса коагуляции: $t = 0$

от них зависят, пересчитывались на каждом временном шаге. При этом в случае фрактальных частиц основной величиной, управляющей динамикой процесса роста кластеров, является потенциал на поверхности макрочастиц. Этот потенциал в предположении его одинаковости для всех частиц, а также с учетом соотношения квазинейтральности и малости величины параметра P выражается через концентрацию пыли и среднее значение эффективного радиуса частиц:

$$e|\varphi_0| = \frac{n_i e^2}{n_d \bar{a}_{eff}}. \tag{50}$$

Обсудим теперь полученные результаты. Динамика процесса коагуляции представлена на рис. 4–7, и прежде всего внимание на себя обращает то обстоятельство, что с течением времени наступает фаза насыщения и процесс практически останавливается. Это полностью соответствует экспериментально наблюдаемому поведению пылевой системы на стадии коагуляции, однако механизм данного явления требует отдельного анализа.

На рис. 3 приводится зависимость константы скорости коагуляции от размеров кластеров в момент окончания счета, что соответствует 2.3 с после начала процесса. Сравнение данной зависимости с аналогичным графиком, соответствующим начальному моменту (рис. 2), показывает, что за время, в течение которого происходит быстрый рост кластеров, характер взаимодействия частиц испытывает кардинальное изменение. Причина этого изменения лежит в зависимости константы взаимодействия от интегральных параметров, таких как потенциал макрочастиц, их концентрация, а также суммарная площадь поверхности.

Как уже было отмечено выше, при рассмотрении взаимодействия фрактальных частиц их потенциал является основным параметром, влияющим на характер взаимодействия частиц. Его изменение с течением времени представлено на рис. 4. Из рисунка видно, что данная величина в течение всего эксперимента монотонно растет, хотя ее абсолютное изменение не очень велико, примерно в 2.5 раза по срав-

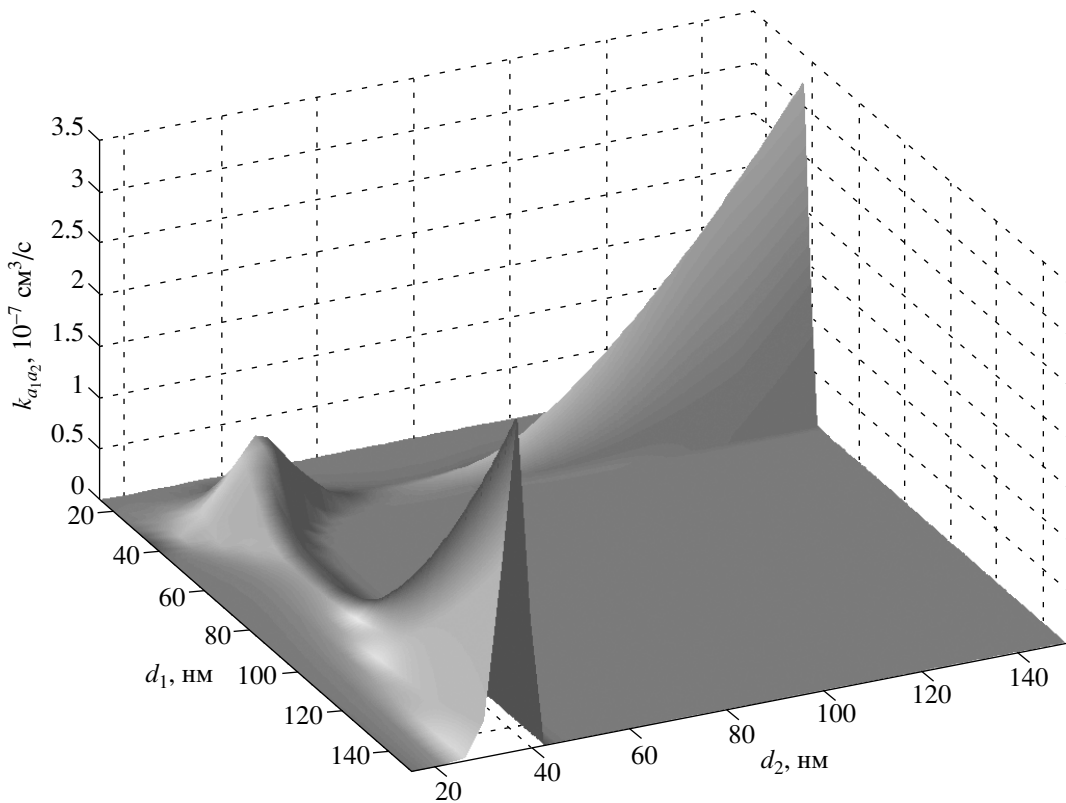


Рис. 3. Зависимость константы скорости коагуляции $k_{a_1 a_2}$ фрактальных частиц от их размеров d_1, d_2 . График построен на момент времени $t = 2.3$ с после начала процесса коагуляции и соответствует стадии насыщения

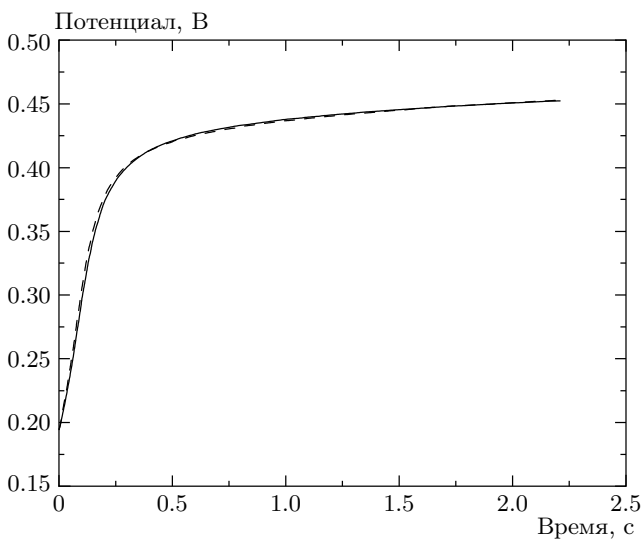


Рис. 4. Зависимость потенциала на поверхности макрочастиц φ_0 от времени. Сплошная кривая соответствует результатам прямого расчета, штриховая получена с помощью соотношения (52)

нению с начальным значением. Тем не менее именно это изменение оказывает определяющее воздействие на дальнейшее развитие всего процесса. Дело в том, что само начало этапа коагуляции возможно только после достижения исходными микрочастицами некоторого порогового размера. Далее они служат источником материала для роста кластеров, но их размер по-прежнему остается в пороговой области, которая, в свою очередь, очень чувствительна к интегральным параметрам системы и может сдвигаться в ту или иную сторону при их изменении. С ростом зарядов частиц также изменяется и характер поведения константы взаимодействия в пороговой области. Оно становится более резким, в результате чего чувствительность процесса к сдвигу порога дополнительно возрастает.

При увеличении потенциала макрочастиц переходная область процесса коагуляции смещается в сторону бoльших размеров, и, как следствие, основной резервуар кристаллитов, участвующих в образовании кластеров, оказывается в области параметров, для которой столкновения между частицами

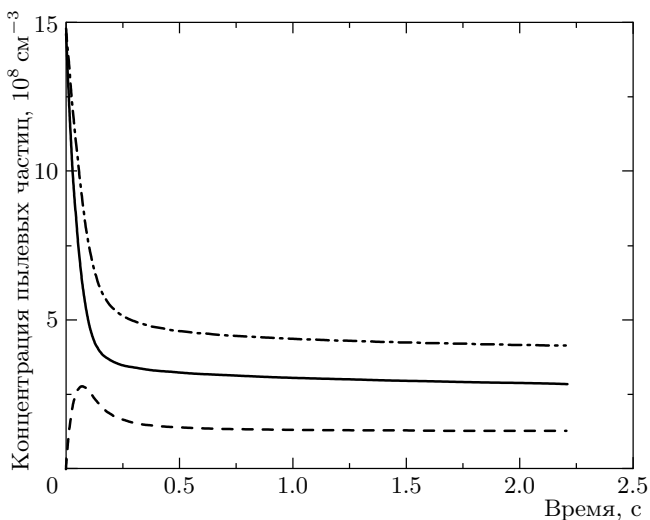


Рис. 5. Зависимость концентрации пылевых частиц от времени. Сплошная кривая представляет эволюцию концентрации исходных кристаллитов, которые служат строительным материалом при образовании кластеров; штриховая показывает изменение концентрации кластеров с течением времени; штрих-пунктирная соответствует изменению общей концентрации пыли в объеме, включающей макро-частицы обеих групп

становятся маловероятными. Это хорошо видно на рис. 3, а также согласуется с полученной выше оценкой критического размера кристаллитов (42), которая говорит, что критический размер при уменьшении концентрации пыли должен расти.

Проследим теперь развитие процесса в динамике. При этом мы будем рассматривать две группы частиц, первая из которых состоит из исходных сферических частиц размера a_0 и служит основным источником для роста кластеров, а вторая включает кластеры, состоящие из двух и более кристаллитов. На рис. 5 изображены зависимости концентраций пылевых частиц от времени. Первой группе соответствует сплошная кривая, второй — штриховая. Здесь также представлено изменение общей концентрации пыли, которое изображено штрих-пунктирной линией. Видно, что в течение первых 0.2 с с момента старта процесса коагуляции концентрация исходных частиц быстро уменьшается примерно на порядок, в то время как концентрация образующихся кластеров синхронно растет. Далее наступает момент, когда под воздействием изменившихся условий исходная группа частиц перестает участвовать в процессе роста пылевых образований и уменьшение их концентрации резко замед-

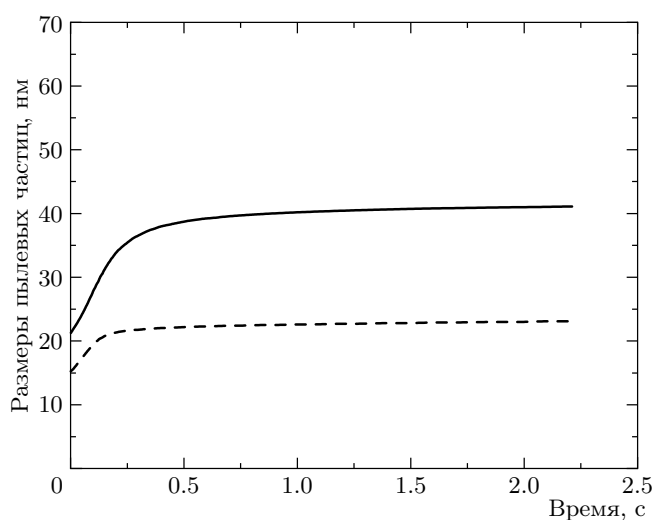


Рис. 6. Зависимость среднего размера макро-частиц от времени. Под размером частицы понимается ее удвоенный эффективный радиус, $d = 2a_{eff}$. Сплошная линия соответствует размеру частиц большей группы, образованных при слипании исходных кристаллитов, штриховая — среднему размеру частиц в системе в целом

ляется. В то же время концентрация кластеров достигает своего максимального значения и начинает убывать. Это связано с тем, что поступление нового материала для строительства прекращается и дальнейший рост частиц во второй группе происходит за счет столкновений между ними самими, постепенно замедляясь по мере сдвига порога коагуляции и уменьшения количества кластеров малого размера. В результате примерно через 0.5 с с момента начала коагуляции наступает фаза насыщения, сопровождающаяся выходом всех параметров системы на стационарные значения.

На рис. 6 представлена динамика изменения среднего размера частиц. При этом под размером частиц понимается их диаметр, так как в большинстве экспериментальных работ оперируют именно этой величиной. Исходными данными для построения графиков служили полученные в расчетах значения \bar{a}_{eff} . Сплошная линия соответствует среднему размеру кластеров, а штриховая — среднему размеру частиц в системе в целом, который, в частности, учитывает наличие в объеме затравочных микро-частиц. Из рисунка видно, что средний размер кластеров значительно превосходит размеры исходных микро-частиц, в то время как общий средний размер частиц в системе оказывается гораздо меньше, благодаря высокой доле кристаллитов из первой груп-

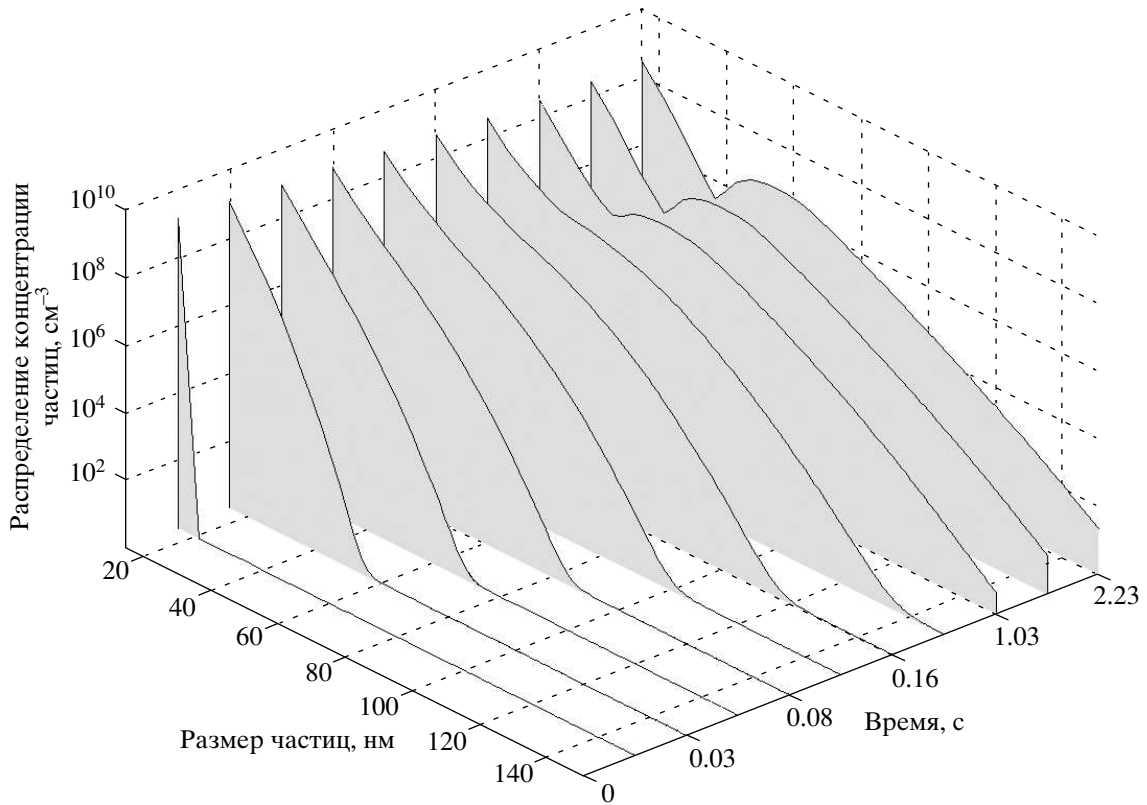


Рис. 7. Эволюция во времени функции распределения макрочастиц по размерам

пы, остающихся в объеме.

Детально динамика изменения функции распределения макрочастиц по размерам, а точнее, парциальных концентраций кластеров f_n , представлена на рис. 7 для различных временных срезов. По оси абсцисс отложен диаметр частиц в нанометрах; по оси ординат — время, по оси z отложен десятичный логарифм числа частиц в единице объема. На рисунке хорошо видно, что с течением времени в распределении частиц по размерам появляются две ярко выраженные группы с достаточно узкой дисперсией. Момент четкого выделения большей группы наступает вскоре после ухода исходных микрочастиц в недоступную для взаимодействия область параметров примерно через 0.3 с после начала процесса. Это связано с тем, что дальнейшее увеличение размеров макрочастиц происходит за счет малых кластеров, состоящих из нескольких кристаллитов.

Помимо динамики изменения параметров системы с течением времени большой интерес представляют также зависимости между самими интегральными величинами, в частности, связь между концентрацией пыли, n_d , средним размером частиц, \bar{a}_{eff} , и

потенциалом на их поверхности. Оказывается, что для размеров частиц и их концентраций, взятых в произвольные моменты времени с высокой точностью выполняется соотношение

$$n_d(t)\bar{a}_{eff}^3(t) = \text{const.} \tag{51}$$

Это проиллюстрировано на рис. 8. Соответственно, учитывая (50), мы получаем, что потенциал связан с размером частиц следующим образом:

$$\varphi_0(\bar{a}_{eff}) \approx \varphi_0(a_0) \left(\frac{\bar{a}_{eff}}{a_0}\right)^2. \tag{52}$$

Точность выполнения данного соотношения можно оценить по рис. 4, на котором приведены две кривые для потенциала. Сплошная кривая соответствует результатам прямого расчета, а штриховая построена с использованием (52).

Полученный результат оказывается несколько неожиданным. Дело в том, что выражение (51) напоминает условие сохранения массы для сферических частиц одинакового размера с радиусом a_{eff} . При этом с сохранением вещества оно никак не связано,

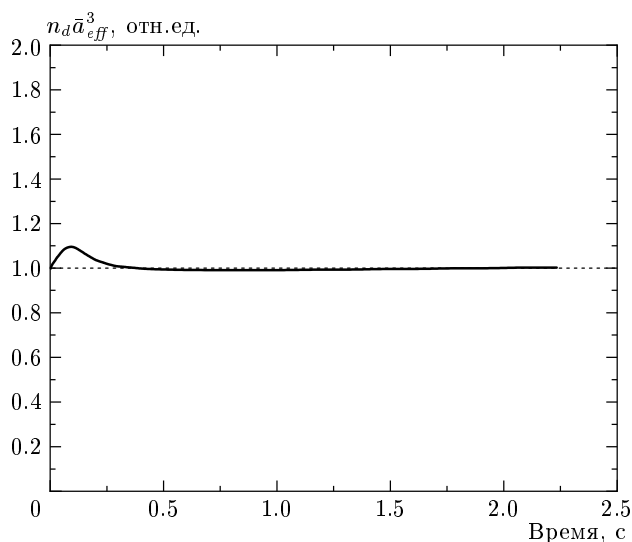


Рис. 8. Связь между концентрацией пыли и средним размером частиц для произвольного момента времени. По оси ординат отложено отношение $n_d \bar{a}_{eff}^3$ к такой же величине, взятой в момент времени $t = 0$

поскольку условие сохранения массы в случае фрактальных кластеров будет совершенно иным:

$$n_d(t) \bar{n}(t) = n_{d0}. \quad (53)$$

Здесь мы через n_{d0} обозначили концентрацию пыли в момент начала процесса коагуляции, а через \bar{n} — среднее число кристаллитов в кластерах. В процессе вычислений это соотношение служило критерием устойчивости численной схемы и выполнялось с точностью до 0.1%. Необычность результата состоит еще и в том, что критерий выбора \bar{a}_{eff} , которым мы пользовались в настоящей работе, был в значительной степени произвольным, и каких либо специальных оценок на этот счет мы не проводили. Таким образом, достаточно высокая степень точности, с которой выполняются соотношения (51) и (52) при численном моделировании динамики процесса, а также учет того факта, что выбор модели взаимодействия может, вообще говоря, осуществляться далеко не единственным способом, наводят на мысль, что полученные нами соотношения носят универсальный характер, хотя причина, по которой они оказываются справедливыми, не совсем ясна.

5. ОБСУЖДЕНИЕ

Подводя итог настоящей работе, сформулируем основные результаты, которые были здесь получе-

ны и сделаем ряд дополнительных замечаний относительно их возможного использования в приложениях, а также о путях дальнейшего развития исследований в этой области.

Нами построена теоретическая модель, включающая описание всех основных этапов процесса роста пылевых образований в низкотемпературной плазме, начиная от стадии начального роста частиц, их коагуляции и заканчивая фазой насыщения. Также была полностью прослежена эволюция функции распределения частиц по размерам в течение всего процесса, и основные особенности ее изменения с течением времени полностью соответствовали реально наблюдаемой картине явления. К ним относятся высокая моносферность распределения частиц по размерам на стадии начального роста и ее разделение на две узкие группы частиц на этапе коагуляции. В рамках построенной теории мы нашли объяснение порогового характера процесса коагуляции и получили оценку критического размера микрочастиц, по достижении которого становится возможным переход от роста частиц за счет осаждения материала из газовой фазы к их коагуляции.

С использованием полученного аналитически выражения для константы скорости коагуляции мы провели численное моделирование процесса образования кластеров по данным реальных экспериментальных условий. Результаты этих экспериментов были кратко изложены во Введении, и теперь можно провести их прямое сравнение с результатами численного расчета. Основные параметры, которые подлежат сравнению, — это временные характеристики процесса, описывающие продолжительность различных его этапов; размеры образующихся частиц; концентрации частиц на стадии насыщения. Результаты сравнения приведены в таблице.

Глядя на эти данные, можно заключить, что построенная нами модель в целом дает близкие к экспериментальным значения величин. Некоторое различие наблюдается лишь в величине концентрации и размеров образующихся кластеров. Это, однако, связано с особенностями выделения групп в [13] и в настоящей работе. У нас в первую группу частиц входят лишь исходные кристаллиты, тогда как образования, состоящие из 2–3 микрочастиц дают заметный вклад в концентрацию кластеров, выделенных во вторую группу. Эти же агломераты ответственны за несколько меньшее значение среднего размера частиц во второй группе. На рис. 7 видно, что максимум в распределении кластеров второй группы по размерам лежит заметно выше значения, приведенного в таблице, и соответствует при-

Сравнение результатов численного моделирования с данными эксперимента [13]

Параметр	Эксперимент	Численный расчет
Скорость увеличения радиуса микрочастиц на стадии начального роста, c_f	15 нм/с	15 нм/с
Радиус кристаллитов, соответствующий порогу начала коагуляции, a_*	7.5–10 нм	$\gtrsim 4.8$ нм
Дисперсия распределения частиц по размерам на стадии начального роста, Δa	–	~ 0.02 нм
Время выделения двух групп частиц на стадии коагуляции (от момента старта)	0.5 с	0.3 с
Время наступления фазы насыщения процесса коагуляции (от момента старта)	0.7 с	0.5 с
Концентрация частиц в первой группе на стадии насыщения	$3 \cdot 10^8 \text{ см}^{-3}$	$2.9 \cdot 10^8 \text{ см}^{-3}$
Концентрация частиц во второй группе на стадии насыщения	$4 \cdot 10^7 \text{ см}^{-3}$	$1.2 \cdot 10^8 \text{ см}^{-3}$
Размер кластеров на стадии насыщения	75 нм	40 нм

близительно 60 нм. В работе [13] разделение частиц на группы не было столь четким, и в добавок к этому там был принят иной способ оценки размера кластеров, основанный на вычислении площади их проекции на плоскость. Временные характеристики процесса роста частиц, рассчитанные численно и полученные экспериментально, оказались довольно близкими. Однако здесь следует отметить, что сильное воздействие на них оказывает концентрация ионов, которую в наших расчетах мы приняли равной исходной концентрации пылевых частиц, так как в экспериментальной работе есть лишь упоминание о том, что эти концентрации имеют близкие значения, но точное значение n_i там не приводится. Дополнительные расчеты, проведенные нами, показали, что увеличение концентрации ионов приводит к заметному ускорению процесса, хотя характерные значения концентраций и размеров кластеров, соответствующие стадии насыщения, меняются при этом не столь сильно.

Сделанное выше сравнение показывает, что построенная нами модель роста пылевых частиц вполне может служить для проведения оценок при описании реально наблюдаемых процессов. Однако следует отметить, что в предложенной теории существует несколько пунктов, требующих серьезного усовершенствования в будущем. Первый из них

заключается в произвольном определении вида зависимости числа цепочек в кластере от общего числа образующих его кристаллитов. Выбор данной зависимости, в основном, оказывает влияние на конечный размер частиц на стадии насыщения и на дисперсию их распределения по размерам, но временные характеристики процесса при этом не испытывают заметных изменений.

Основная же трудность при исследовании обсуждаемой модели состоит в отсутствии на настоящий момент достаточно проработанных аналитических методов для расчета функции распределения ионов и электронов в окрестности пылевых частиц нанометрового размера. Для того чтобы провести расчеты, нам пришлось взять за основу равновесную функцию распределения ионов, в которой величина T_i , характеризующая температуру ионов в окрестности макрочастицы, учитывала разогрев ионной подсистемы в поле пылинки и была взята в виде $T_i \approx \zeta Z_i e |\varphi_0|$. Это приближение было принято на основе проведенных нами ранее численных расчетов распределения ионов в окрестности макрочастицы [47]. Выбор величины ζ для моделирования процесса коагуляции в рамках предложенной модели оказывается очень важным, поскольку от этого параметра очень сильно зависит значение критического размера кристаллитов, после достижения ко-

того начинается процесс коагуляции. Таким образом, приходим к выводу, что знание конкретного вида функции распределения ионов в непосредственной окрестности пылевых кластеров является ключевым при описании процессов их роста, и в дальнейших исследованиях на этот вопрос следует обратить особое внимание.

Основные результаты, полученные в настоящей работе, в целом относятся к моделированию процессов коагуляции и роста пылевых образований, имеющих фрактальную топологию. Однако рост кластеров сферической формы также является широко распространенным явлением и часто наблюдается на опыте [22, 30]. Как уже отмечалось выше, материал, из которого происходит образование кластера, должен играть основную роль при определении формы растущих структур, и в нашей модели фрактальная топология поверхности кластера соответствует веществам с хорошей проводимостью. Выражение для сил, действующих на макрочастицы со стороны ионных потоков, было изначально получено именно для данного случая, поэтому вопрос о характере взаимодействия непроводящих частиц требует отдельного обсуждения.

В последнем случае поляризация частиц в электрическом поле соседей будет невелика и дополнительные потоки ионов, связанные с ней, не смогут скомпенсировать сил электростатического отталкивания между пылинками. Тем не менее появление анизотропии ионных потоков возможно и здесь. Дело в том, что в условиях, когда концентрация пыли имеет тот же порядок величины, что и концентрация ионов, или превосходит последнюю, средние заряды, накопленные макрочастицами, не превышают нескольких единиц зарядов электрона. В этом случае наблюдается резкая анизотропия в распределении заряда вдоль поверхности кластера, в результате чего он приобретает большой дипольный момент. Наличие электрического поля соседних частиц должно приводить к повороту кластера таким образом, чтобы его дипольный момент был направлен вдоль внешнего поля. Тогда мы приходим к той же ситуации, что существовала для проводящих частиц, с той лишь разницей, что там дипольный момент кластера создавался перераспределением подвижных зарядов вдоль его поверхности. Как и в случае проводящих пылинок, мы получим перераспределение ионных потоков на поверхность кластера, и при определенных условиях это создаст эффективную силу притяжения между частицами.

Важной особенностью данного описания является зависимость характера взаимодействия

макрочастиц от их размеров. Во-первых, увеличение размера кластера приведет к увеличению его массы, что в конечном итоге сделает время разворота во внешнем поле большим по сравнению со временем изменения его дипольного момента, вызванного поглощением ионов и электронов из плазмы. В результате направленное действие ионных потоков будет утрачено. Во-вторых, с ростом размеров кластера его заряд увеличится, а распределение заряда вдоль поверхности станет более однородным. В этом случае уменьшится дипольный момент, а также и анизотропия ионных потоков на поверхность частицы. Таким образом, мы можно заключить, что силы притяжения между непроводящими частицами будут действовать только на кристаллиты малого размера, в результате чего рост пылевых образований будет, как и в случае фрактальной топологии, происходить за счет частиц меньшего диаметра, с той лишь разницей, что теперь он будет однородным, поскольку заряд на поверхности непроводящих макрочастиц распределен равномерно. Селективность константы взаимодействия по отношению к размерам частиц приведет, как и в рассмотренном нами случае фрактального роста кластеров, к образованию двух групп частиц, первая из которых будет служить источником материала, а вторая — равномерно увеличиваться в размерах за счет частиц исходной группы.

В заключение нам бы хотелось поблагодарить А. М. Дыхне, который принял активное участие в обсуждении вопросов, связанных с рассмотренным кругом задач, и чьи комментарии сыграли неограниченную роль при подготовке настоящей работы.

Работа выполнена при частичной поддержке РФФИ (гранты № 01-02-17726, 00-15-96554).

ЛИТЕРАТУРА

1. G. Selwyn, J. Singh, and R. Bennet, *J. Vac. Sci. Technol. A* **7**, 2758 (1989).
2. M. P. Garrity, T. W. Peterson, and J. F. O'Hanlon, *J. Vac. Sci. Technol. A* **14**(2), 550 (1996).
3. L. Boufendi, J. Hermann, A. Bouchoule et al., *J. Appl. Phys.* **76**, 148 (1994).
4. K. Spears, T. Robinson, and R. Roth, *IEEE Trans. Plasma Sci.* **14**, 179 (1986).
5. G. Sylwyn, J. McKillop, K. Haller, and J. Wu, *J. Vac. Sci. Technol. A* **8**, 1726 (1990).

6. G. Jellum and D. Graves, *J. Appl. Phys.* **67**, 6490 (1990).
7. R. Buss and J. Babu, *J. Vac. Sci. Technol. A* **14**, 577 (1996).
8. H. Hahn and R. Averback, *J. Appl. Phys.* **67**, 1113 (1990).
9. T. Fukuzava, H. Kawasaki, M. Shiratani, and Y. Watanabe, *Jpn. J. Appl. Phys.* **33**(I), No. 7B, 4212 (1994).
10. H. Kawasaki, T. Fukuzava, H. Tsuruoka et al., *Jpn. J. Appl. Phys.* **33**(I), No. 7B, 4198 (1994).
11. W. Böhme, W. E. Köhler, M. Römheld et al., *IEEE Trans. Plas. Sci.* **22**, 110 (1994).
12. M. Shiratani, T. Fukuzawa, and Y. Watanabe, *IEEE Trans. Plasma Sci.* **22**, 103 (1994).
13. Y. Watanabe, M. Shiratani, H. Kawasaki et al., *J. Vac. Sci. Technol. A* **14**(2), 540 (1996).
14. Y. Watanabe and M. Shiratani, *Jpn. J. Appl. Phys.* **32**(I), No. 6B, 3074 (1993).
15. A. Bouchoule, L. Boufendi, J. Hermann et al., *Pure & Appl. Chem.* **68**, 1121 (1996).
16. H. Kawasaki, K. Sakamoto, S. Maeda et al., *Jpn. J. Appl. Phys.* **37**(I), No. 10, 5757 (1998).
17. T. Fukuzava, S. Kushima, Y. Matsuoka et al., *J. Appl. Phys.* **86**, 3543 (1999).
18. K. Koga, Y. Matsuoka, K. Tanaka et al., *Appl. Phys. Lett.* **77**, 196 (2000).
19. M. Shiratani, T. Fukuzawa, and Y. Watanabe, *Jpn. J. Appl. Phys.* **38**(I), No. 7B, 4542 (1999).
20. H. Kawasaki, K. Sakamoto, and S. Maeda, *Jpn. J. Appl. Phys.* **37**(II), No. 10B, L1264 (1998).
21. H. Kawasaki, J. Kida, K. Sakamoto et al., *J. Appl. Phys.* **83**, 5665 (1998).
22. Y. Hayashi and K. Tachibana, *Jpn. J. Appl. Phys.* **33**(I), No. 7B, 4208 (1994).
23. Y. Hayashi and K. Tachibana, *Jpn. J. Appl. Phys.* **33**(II), No. 6A, L804 (1994).
24. G. Praburam and J. Goree, *Astrophys. J.* **441**, 830 (1995).
25. D. Samsonov and J. Goree, *J. Vac. Sci. Technol. A* **17**, 2835 (1999).
26. D. Samsonov and J. Goree, *Phys. Rev. E* **59**, 1047 (1999).
27. P. Haaland, S. Ibrani, and H. Jiang, *Appl. Phys. Lett.* **64**, 1629 (1994).
28. Y. Matsuoka, M. Shiratani, T. Fukuzava et al., *Jpn. J. Appl. Phys.* **38**(I), No. 7B, 4556 (1999).
29. M. Shiratani, S. Maeda, K. Koga, and Y. Watanabe, *Jpn. J. Appl. Phys.* **39**(I), No. 1, 287 (2000).
30. A. Garscadden, *Pure & Appl. Chem.* **66**, 1319 (1994).
31. M. T. Swihart, S. Nijhawan, M. R. Mahajan et al., *J. Aerosol Sci.* **29**, S79 (1998).
32. U. R. Kortshagen, U. V. Bhandarkar, M. T. Swihart, and M. T. Girshick, *Pure & Appl. Chem.* **71**, 1871 (1999).
33. M. T. Swihart and S. L. Girshick, *J. Phys. Chem. B* **103**, 64 (1999).
34. U. V. Bhandarkar, M. T. Swihart, S. L. Girshick, and U. R. Kortshagen, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **33**, 2731 (2000).
35. Kio-Seon Kim and M. Ikegawa, *Plasma Sourc. Sci. Technol.* **5**, 311 (1996).
36. P. Haaland, A. Garscadden, and B. Ganguly, *Appl. Phys. Lett.* **69**, 904 (1996).
37. S. J. Choi and M. J. Kushner, *J. Appl. Phys.* **74**, 853 (1993).
38. В. Н. Цыгович, *УФН* **167**, 57 (1997).
39. V. A. Schweigert and I. V. Schweigert, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **29**, 655 (1996).
40. H. U. Keller, J. Blum, B. Donn et al., *Adv. Space Res.* **13**(7), 73 (1993).
41. F. Y. Huang, H. H. Hwang, and M. J. Kushner, *J. Vac. Sci. Technol. A* **14**(2), 562 (1996).
42. F. Y. Huang and M. J. Kushner, *J. Appl. Phys.* **81**, 5960 (1997).
43. K. Watanabe, K. Nishimura, and T. Sato, *Advances in Dusty Plasmas*, ed. by P. K. Shukla, D. A. Mendis, and T. Desai, World Sci., Singapore (1998), p. 394.
44. Ю. А. Манкелевич, М. А. Олеванов, Т. В. Рахимова, *ЖЭТФ* **121**, 1288 (2002).
45. R. A. Quinn and J. Goree, *Phys. Rev. E* **61**, 3033 (2000).
46. R. A. Quinn and J. Goree, *Phys. Plasmas* **7**, 3904 (2002).
47. М. А. Олеванов, Ю. А. Манкелевич, Т. В. Рахимова, *ЖЭТФ* **123**, 503 (2003).