ISSN 1028-0960

Номер 5

Май 2023

# ПОВЕРХНОСТЬ

## *Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования*

www.sciencejournals.ru

# СОДЕРЖАНИЕ

**Номер 5, 2023**


Проект сканирующего и проекционного микроскопов для станции “Наноскопия” для биологических исследований в “окне прозрачности воды”
*И. В. Малышев, А. Е. Пестов, В. Н. Полковников, Д. Г. Реунов, М. Н. Торопов, Н. И. Чхало, Я. В. Ракшун, Ю. В. Хомяков, В. А. Чернов, И. А. Щелоков* 3

Определение кинетических характеристик термодесорбции и гетерогенной реакции диссоциации молекул морфина на поверхности окисленного вольфрама
*Г. Т. Рахманов, Б. Е. Умирзаков, Д. Т. Усманов* 16

Влияние модифицирования поверхности металлической матрицы на механические свойства слоистых композитов силумин/углепластик
*А. А. Клопотов, Ю. Ф. Иванов, А. М. Устинов, А. Д. Тересов, Ю. А. Абзаев, В. А. Литвинова* 23

Управление магнитостатическими полями рассеяния с помощью электрического тока
*О. А. Тихомиров* 32

Оптические свойства и структура пленок $In_2O_3$, полученных на подложках $Al_2O_3$ (012) методом dc-магнетронного напыления
*А. А. Тихий, Ю. М. Николаенко, Е. А. Свиридова, И. В. Жихарев* 39

Свойства и перспективы применения литиевого жидкого стекла в терморегулирующих покрытиях космических аппаратов
*М. М. Михайлов, А. Н. Лапин, С. А. Юрьев, В. А. Горончко* 46

Расширение возможностей гибридного режима атомно-силового микроскопа в двухзондовом манипуляторе
*А. А. Жуков* 53

О пространственном разрешении пьезорезонансного зондового датчика с вольфрамовой иглой
*О. М. Горбенко, М. В. Жуков, С. Ю. Лукашенко, С. В. Пичахчи, И. Д. Сапожников, М. Л. Фельштын, А. О. Голубок* 58

Особенности поведения кривой подвода сканирующего микроскопа ионной проводимости
*С. Ю. Лукашенко, О. М. Горбенко, М. В. Жуков, С. В. Пичахчи, И. Д. Сапожников, М. Л. Фельштын, А. О. Голубок* 65

Влияние многократного рассеяния на спектрально-угловую плотность дифрагированного переходного излучения
*С. В. Блажевич, А. С. Горлов, А. В. Носков, А. Э. Федосеев* 73

Современная растровая электронная микроскопия. 1. Вторичная электронная эмиссия
*Ю. А. Новиков* 80

Устойчивость двухплечевого разряда в кольцевом лазере
*М. В. Чиркин, С. В. Устинов, В. Ю. Мишин, А. Е. Серебряков* 95

Оптимизация геометрии конструкции высокочастотных двигателей и ионных источников
*В. К. Абгарян, А. В. Мельников, А. Ю. Купреева, О. Д. Пейсахович* 103

# Contents

**No. 5, 2023**


Project of Scanning and Projection Microscopes for the Nanoscopy Station for Biological Research in the "Water Transparency Window"
*I. V. Malyshev, A. E. Pestov, V. N. Polkovnikov, D. G. Reunov, M. N. Toropov, N. I. Chkhalo, Ya. V. Rakshun, Yu. V. Khomyakov, V. A. Chernov, I. A. Shchelokov* 3

Determination of the Kinetic Characteristics of Thermal Desorption and Heterogeneous Reaction of Dissociation of Morphine Molecules on the Surface of Oxidized Tungsten
*G. T. Rakhmanov, B. E. Umirzakov, D. T. Usmanov* 16

Influence of Modification of the Surface of a Metal Matrix on the Mechanical Properties of Layered Composites "Aluminum/Carbon Fiber" and Silumin/Carbon Fiber
*A. A. Klopotov, Yu. F. Ivanov, A. M. Ustinov, A. D. Teresov, Yu. A. Abzaev, V. A. Litvinova* 23

Control of the Magnetostatic Stray Fields Using Electric Current
*O. A. Tikhomirov* 32

Optical Properties and Structure of $In_2O_3$ Films Deposited on $Al_2O_3$ (012) Substrates by dc-Magnetron Sputtering
*A. A. Tikhii, Yu. M Nikolaenko, K. A. Svyrydova, I. V. Zhikharev* 39

Properties and Prospects for Application of Lithium Liquid Glass in Thermal Control Coatings of Spacecraft
*M. M. Mikhailov, A. N. Lapin, S. A. Yuryev, V. A. Goronchko* 46

The Extension of Field of Applications of Atomic-Force Microscope Hybrid Mode of Two-Probes Nano-Manipulator
*A. A. Zhukov* 53

On the Spatial Resolution of a Piezoresonance Probe Sensor with a Wolfram Needle
*O. M. Gorbenko, M. V. Zhukov, S. Yu. Lukashenko, S. V. Pichahchi, I. D. Sapozhnikov, M. L. Felshtyn, A. O. Golubok* 58

Behavior Features of the Approach Curve of a Scanning Ion-Conductance Microscope
*S. Yu. Lukashenko, O. M. Gorbenko, M. V. Zhukov, S. V. Pichahchi, I. D. Sapozhnikov, M. L. Felshtyn, A. O. Golubok* 65

Effect of Multiple Scattering on the Spectral-Angular Density of Diffracted Transition Radiation
*S. V. Blazhevich, A. S. Gorlov, A. V. Noskov, A. E. Fedoseev* 73

Modern Scanning Electron Microscopy. 1. Secondary Electron Emission
*Yu. A. Novikov* 80

Stability of Bilateral Discharge in the Ring Laser
*M. V. Chirkin, S. V. Ustinov, V. Yu. Mishin, A. E. Serebryakov* 95

Geometry Design Optimization of High-Frequency Ion Thrusters and Ion Sources
*V. K. Abgaryan, A. V. Melnikov, A. Yu. Kupreeva, O. D. Peisakhovich* 103

ПОВЕРХНОСТЬ. РЕНТГЕНОВСКИЕ, СИНХРОТРОННЫЕ И НЕЙТРОННЫЕ ИССЛЕДОВАНИЯ, 2023, № 5, с. 3–15

УДК 53.086

# ПРОЕКТ СКАНИРУЮЩЕГО И ПРОЕКЦИОННОГО МИКРОСКОПОВ ДЛЯ СТАНЦИИ “НАНОСКОПИЯ” ДЛЯ БИОЛОГИЧЕСКИХ ИССЛЕДОВАНИЙ В “ОКНЕ ПРОЗРАЧНОСТИ ВОДЫ”

**© 2023 г. И. В. Малышев[a], *, А. Е. Пестов[a], В. Н. Полковников[a], Д. Г. Реунов[a], М. Н. Торопов[a], Н. И. Чхало[a], Я. В. Ракшун[b], Ю. В. Хомяков[b], В. А. Чернов[b], И. А. Щелоков[c]**

[a] *Институт физики микроструктур РАН, Нижний Новгород, 603950 Россия*

[b] *Институт ядерной физики им. Г.И. Будкера СО РАН, Новосибирск, 630090 Россия*

[c] *Институт проблем технологии микроэлектроники и особочистых материалов РАН, Черноголовка, 142432 Россия*

*****e-mail: ilya-malyshev@ipmras.ru*

Поступила в редакцию 21.07.2022 г.
После доработки 17.10.2022 г.
Принята к публикации 17.10.2022 г.

Дано краткое описание концепции мягкого рентгеновского микроскопа для станции “Наноскопия”, которая планируется для установки на синхротроне четвертого поколения СКИФ. Микроскоп будет предназначен для изучения строения клеток и динамических процессов в них с нанометровым пространственным разрешением. Прибор будет использовать уникальный абсорбционный контраст ~15 между углеродсодержащими структурами и водой в спектральном диапазоне “окна прозрачности воды” $\lambda = 2.3–4.3$ нм, что исключает необходимость контрастирования и применения флуорофоров и минимизирует необходимые для получения высококачественных 3D-изображений поглощенные в образцах дозы ионизирующего излучения. Приведены сканирующая и проекционная схемы микроскопа, их основные технические характеристики, в том числе расчетные спектры и параметры ондуляторного источника, получена оценка поглощенных доз в зависимости от разрешения. Основное преимущество предлагаемой концепции заключается в использовании объектива из высокоапертурных многослойных рентгеновских зеркал, который позволяет четко визуализировать фокальный срез образца. Для восстановления трехмерной структуры замороженных или высушенных образцов будет также использована технически простая аксиальная томография. В сканирующей схеме благодаря малой дозе облучения можно будет изучать живые клетки растений с разрешением до 10 нм, животных – до 80 нм и замороженные образцы с разрешением до 5 нм. В проекционной схеме за счет одномоментного наблюдения всего фокального *XY*-среза существенно уменьшено время получения трехмерных изображений, но за счет большой дозы она будет ориентирована в основном на изучение фиксированных образцов.

**Ключевые слова:** мягкая рентгеновская микроскопия, “окно прозрачности воды”, синхротронное излучение, станция для синхротрона СКИФ, изучение живых клеток с нанометровым разрешением.

**DOI:** 10.31857/S1028096023050126, **EDN:** AJWIBH

## ВВЕДЕНИЕ

В современных биологических и медицинских задачах для понимания механизмов функционирования биологических клеток, а также для изучения влияния различных болезней на клетки [1, 2] требуется увидеть детали нативных, в идеале живых, клеток с разрешением в десятки нанометров. Для решения этой проблемы в настоящее время в арсенале исследователей имеются фактически два инструмента – электронная микроскопия [3] и оптическая микроскопия с суперразрешением [4].

Основным физическим ограничением этих методов является необходимость использования флуорофоров в случае флуоресцентных методов или контрастирования в электронной микроскопии. Использование этих веществ уже само по себе модифицирует исследуемый объект. Эти методы позволяют наблюдать только структуры и молекулы, несущие на себе флуоресцентную метку или контрастное вещество, в то время как остальная часть материала образца, образующая биологический “контекст”, в котором находится иссле-

дуемая структура или протекает исследуемый процесс, остается недоступной для наблюдения.

Уже более 30 лет развивается мягкая рентгеновская микроскопия в спектральной области “окна прозрачности воды” 2.3–4.3 нм. Уникальность этого метода заключается в следующем. Во-первых, наблюдается большой, ~15, абсорбционный контраст между протеинами, жирами и углеводами, основу которых составляет углерод, по отношению к межклеточной жидкости (основой поглощающий элемент кислород). Благодаря этому не требуется контрастирование и минимизируется поглощенная доза, необходимая для получения качественных изображений. Во-вторых, практически полностью отсутствует рассеяние, что в совокупности с достаточно большой длиной пробега излучения позволяет изучать достаточно толстые, до 10 мкм и более, образцы, которые даже могут быть помещены в кювету при нормальном давлении. Подробнее об особенностях взаимодействия излучения этого диапазона с биологическими образцами изложено в [2].

В виду актуальности темы на современных синхротронах имеются соответствующие станции мягкой рентгеновской микроскопии. Микроскопы делятся на сканирующие [5–8] и проекционные [9–12]. Как сканирующие, так и проекционные микроскопы на основе зонных пластинок Френеля обеспечивают высокое латеральное (2D) разрешение. Например, в [6] 2D-разрешение составило менее 10 нм. Существенно хуже ситуация с объемным разрешением. В [5] получено 3D-разрешение 30 нм в латеральной плоскости и 550 нм вдоль оптической оси. В лучших проекционных мягких рентгеновских микроскопах, в которых изучали замороженные образцы, было получено объемное (3D) разрешение на уровне 50–60 нм [9–12]. Однако, несмотря на перспективы и демонстрацию ряда несомненных достижений, мягкая рентгеновская микроскопия так и не стала важным инструментом в клеточной биологии.

Основная причина этого – недостатки используемой концепции микроскопов на базе зонных пластинок Френеля. Главными недостатками таких пластинок являются низкие эффективность и угловая апертура ($NA < 0.1$). Низкая эффективность пластинок в проекционных микроскопах приводит к дополнительной поглощенной дозе. Низкая числовая апертура приводит к большой (единицы микрометров) глубине фокуса, что сильно ограничивает 3D-разрешение в схеме сканирующего микроскопа. Проекционная микроскопия для восстановления 3D-структуры клетки требует применения трудоемкой и длительной процедуры угловой томографии, которая помимо потери точности приводит к дополнительным поглощенным дозам.

Поэтому поиск новых подходов к построению микроскопов для “водного окна прозрачности” является крайне актуальным. Целью предлагаемых в работе решений является достижение нанометрового 3D-разрешения при минимально возможных поглощенных дозах в биологических образцах, в идеале – возможность наблюдения за живыми клетками. Для достижения этой цели на синхротроне четвертого поколения СКИФ будет разработана станция “Наноскопия”, предназначенная для изучения строения клеток и динамических процессов в них с нанометровым пространственным разрешением. В работе описаны принципы построения микроскопа, его рентгенооптические схемы и оценка поглощенных доз в зависимости от разрешения.

## ВЫБОР ТИПА МИКРОСКОПА, ОПТИКИ И ДЛИНЫ ВОЛНЫ

При выборе типа микроскопа руководствовались следующими соображениями. Минимальных поглощенных доз можно достичь при использовании сканирующих рентгеновских микроскопов. Это связано с тем, что в проекционном микроскопе потери интенсивности на рентгенооптических элементах объектива напрямую приводят к увеличению поглощенной дозы. Например, при эффективности схемы 10% для достижения требуемого числа полезных событий необходимо в 10 раз увеличить поглощенную дозу. В сканирующем микроскопе потери на рентгенооптических элементах приводят лишь к потере интенсивности зондового пучка и никак не влияют на поглощенную в образце дозу.

Еще одним преимуществом сканирующего микроскопа является то, что для регистрации изображений не требуются матричные детекторы. Это позволяет повысить эффективность регистрации почти до 100% и заметно (до МГц) увеличить быстродействие детектора.

Однако использование сканирующего микроскопа для 3D-реконструкции образцов ограничено величиной глубины фокуса $DoF$ фокусирующей оптики:

$$DoF \approx \pm\lambda/NA^2, \qquad (1)$$

где $\lambda$ – рабочая длина волны микроскопа, $NA$ – числовая апертура. Из соотношения (1) видно, что для достижения разрешения на уровне длины волны необходима светосильная оптика с $NA$, приближающейся к единице. В случае зонных пластинок Френеля $NA < 0.1$ [5–12], поэтому их продольное разрешение будет больше, чем $\pm 100\lambda$. Поэтому этот тип оптики для сканирующего микроскопа сверхвысокого разрешения не годится.

Большими геометрическими и угловыми апертурами обладают многослойные рентгеновские

зеркала нормального падения, нанесенные на фокусирующие подложки. В частности, на основе этих элементов изготовлены объективы для проекционной литографии на длине волны 13.5 нм с числовой апертурой $NA = 0.3–0.33$ [13, 14] и в разработке объектив с $NA = 0.55$ [15].

Максимального абсорбционного контраста между протеинами и водой (около 20), а также минимального поглощения (длина поглощения около 10 мкм) можно достичь на длине волны непосредственно вблизи края поглощения кислорода $\lambda_{OK} = 2.33$ нм. Для этой спектральной области наибольшим коэффициентами отражения $R \approx 9\%$ при нормальном падении на длине волны $\lambda = 2.42$ нм обладают многослойные рентгеновские зеркала Cr/V [16]. Полоса пропускания составляет 0.2%.

Интерес также представляют зеркала $Cr/Ti/B_4C$ и Cr/Sc. В первом случае на длине волны 2.83 нм при нормальном падении получен коэффициент отражения $R \approx 15.75\%$ при спектральной полосе пропускания 0.3% [17]. Однако результаты [16, 17] вызывают определенные сомнения, так как приведены однократно и в не реферируемых изданиях.

Многослойные рентгеновские зеркала Cr/Sc имеют рекордный коэффициент отражения $R \approx 23\%$ на длине волны 3.12 нм при спектральной полосе пропускания 0.3% [18]. Для разрабатываемого микроскопа была выбрана пара материалов Cr/Sc и, соответственно, рабочая длина волны 3.12 нм. Этот выбор сделан по следующим причинам. Во-первых, авторы имеют многолетний опыт в разработке и применении зеркала Cr/Sc [19–21]. В [22] на структурах без барьерных слоев Cr/Sc был получен коэффициент отражения $R \approx 21\%$. Полагаем, что применение барьерных покрытий и нитридизации слоев, как в [18], позволит заметно увеличить коэффициент отражения. Во-вторых, многослойные рентгеновские зеркала Cr/Sc обладают как большим коэффициентом отражения, так и широкой спектральной полосой, что увеличит интенсивность зондового пучка и, соответственно, уменьшит время проведения эксперимента. В-третьих, при изготовлении многослойных зеркал для объектива очень жесткие требования предъявляют к подложкам. Для обеспечения дифракционного качества изображения, согласно критерию Марешаля, среднеквадратическая аберрация объектива не должна превышать $RMS \leq \lambda/14$. В случае $\lambda = 3.12$ нм это соответствует величине $RMS \leq 0.22$ нм. Изготовление таких подложек находится на пределе возможностей современных технологий [23]. В-четвертых, несмотря на отход от края поглощения кислорода, абсорбционный контраст и длина поглощения уменьшились не сильно, до 15 и 6 мкм соответственно.

Как уже отмечалось выше, достоинством сканирующего микроскопа является минимально возможная доза, поглощенная в исследуемом образце. Однако эта схема мягкого рентгеновского микроскопа имеет один существенный недостаток. Из-за ограниченной скорости пьезоэлектрического 3D-наносканера (например, [24]) время съемки томограммы может достигнуть часа и более. Этого недостатка лишена схема проекционного микроскопа, в которой за один кадр снимается сразу все *XY*-поле, а для восстановления 3D строения образец перемещается вдоль оптической оси *Z*. Такой подход позволяет уменьшить время томографии до долей единиц минут, а при наблюдении тонких образцов или выбранных срезов – долей секунды. Поэтому для реализации обеих мод работы на станции “Наноскопия” будут установлены два мягких рентгеновских микроскопа – сканирующего и проекционного типов.

## РЕНТГЕНООПТИЧЕСКАЯ СХЕМА СКАНИРУЮЩЕГО МИКРОСКОПА

При разработке рентгенооптической схемы микроскопа надо учитывать особенности синхротронного источника четвертого поколения. Параметры источника рентгеновского излучения приведены в табл. 1. На рис. 1, 2 показаны интенсивности различных гармоник источника, из которых следует следующее. Во-первых, часть энергии пучка синхротронного излучения соответствует высоким гармоникам и должна быть “убрана”, чтобы не попадать на прецизионные рентгенооптические элементы микроскопа. Во-вторых, на расстоянии 20 м от источника размер рентгеновского пучка на полувысоте интенсивности составит 1 мм (рис. 3). Это является серьезнейшей проблемой для применения зеркальной оптики, так как фактически требуется использование изображающей микрооптики. С учетом того, что многослойные рентгеновские зеркала – это брэгговские отражатели, в каждой точке падения излучения на зеркало должно выполняться брэгговское условие. Очевидно, что большие градиенты толщин пленок на общей длине порядка 1 мм не могут быть получены.

Другая проблема – это ориентация оптической оси микроскопа. Оси микроскопов, описанных в упомянутых выше работах, расположены горизонтально, в плоскости орбиты синхротрона. С точки зрения эргономики и удобства работы с образцами – это неудобная ориентация. Обычно все микроскопы имеют вертикальную оптическую ось.

В настоящем проекте обе эти проблемы решены за счет гибридной схемы микроскопа, включающей отражательные и дифракционные рентгенооптические элементы. Рентгенооптическая схема сканирующего мягкого рентгеновского микроскопа приведена на рис. 4, основные элементы и их взаимное расположение описаны в табл. 2.

**Таблица 1.** Основные параметры источника рентгеновского излучения

| Параметр | Значение |
|---|---|
| Тип источника × планарный вертикальный ондулятор: | |
| Период, см | 5 |
| Число периодов | 78 |
| Продольная длина, м | 3.9 |
| Рабочая длина волны, нм; энергия, эВ | 3.12; 397.4 |
| Монохроматичность пучка, %; уровень ширины на половине максимума (FWHM), эВ | 2; 8 |
| Размер на полувысоте интенсивности (наибольший), мкм | 30 |
| Угловая расходимость, мкрад | 25 |
| Средняя интенсивность излучения первой гармоники в полосе 0.1%, $10^{15}$ фотон/с | 5.6 |
| Полная мощность излучения, Вт | 500 |

Излучение из ондулятора, распространяясь по каналу, падает на систему двух плоских зеркал *1* (рис. 4). Система зеркал выполняет функции фильтра высоких гармоник и аттенюатора интенсивности рентгеновского пучка, попадающего в микроскоп. Для примера на рис. 5 приведена спектральная зависимость коэффициента отражения от кремниевого зеркала при угле падения излучения 3°. Как видно из рисунка, при коэффициенте отражения первой (рабочей) гармоники 55%, подавление второй гармоники составит около 16 раз, соответственно, при двукратном отражении – около 260. Положение относительно источника и параметры зеркал (угол падения, материал покрытия) будут оптимизированы в дальнейшем с целью обеспечения близости к 100% отражения. Тем не менее видно, что такая система обеспечивает практически полное подавление всех гармоник, что в дальнейшем не потребует охлаждения зеркал микроскопа. Отсутствие сильных тепловых нагрузок имеет принципиальное значение для предотвращения искажения волновых фронтов.

Проходя далее, излучение падает на первый элемент наноскопа – линзу Брэгга–Френеля *5* (рис. 4) [25]. В качестве отражающего будет использовано покрытие Cr/Sc. Линза Брэгга–Френеля выполняет сразу несколько функций. Во-первых, осуществляет первую стадию фокусировки рентгеновского излучения до размера порядка 0.125 мкм (уменьшение 200 раз). Во-вторых, поворачивает пучок на 90°, тем самым обеспечивая удобную ориентацию оптической оси микроскопа. В-третьих, так как на линзу падает квазимонохроматический пучок, при ее изготовлении не требуется напыления многослойного зеркала с градиентом периода по поверхности.

В плоскости фокусировки устанавливают диафрагму с субмикронным отверстием. Диафрагма выполняет функцию фильтра для обрезания “хвостов” зондового пучка. Расходящийся пучок падает на объектив Шварцшильда. Объектив с числовой апертурой $NA = 0.4$ еще в 54 раза умень-

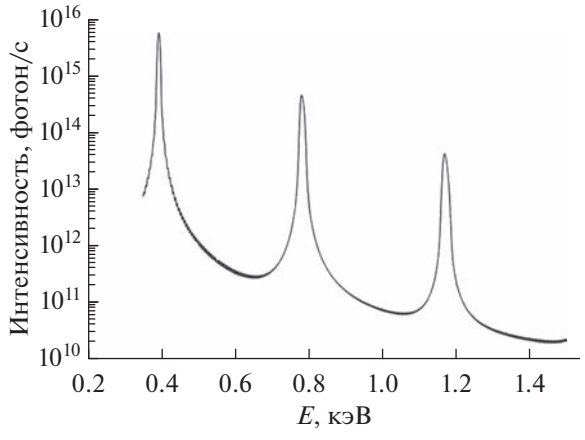


**Рис. 1.** Интенсивность различных гармоник источника в 0.1% полосе энергии (кольцевой ондулятор, $B$ = = 0.39 Тл, $\lambda_u = 50$ мм, диаметр потока фотонов 1 мм на расстоянии 20 м от источника, $L_u = 3.9$ м, $N_p = 78$).

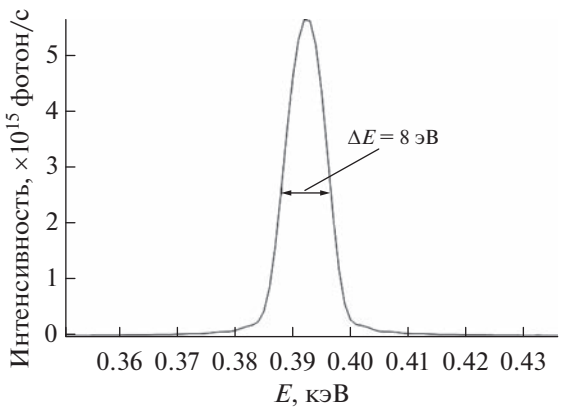


**Рис. 2.** Интенсивность первой гармоники в 0.1% полосе энергии.

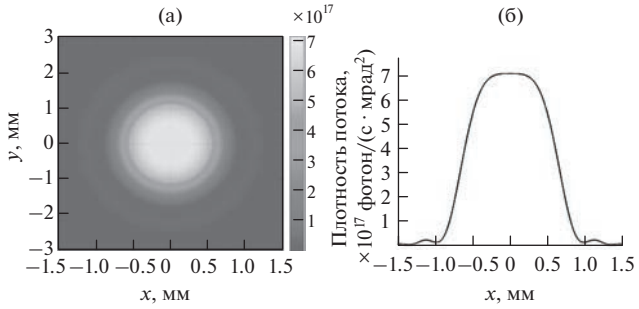


**Рис. 3.** Расчетный пучок на расстоянии 20 м от источника синхротронного излучения, сечение в 0.1% полосе энергии: а – *XY*; б – *X*.

шает размер фокуса в плоскости образца. Расчетное распределение интенсивности зондового пучка, ограниченное дифракцией, приведено на рис. 6. Поперечный размер изображения составляет FWHM = 5 нм. Таким образом, потенциально рентгенооптическая схема обеспечивает латеральное разрешение на уровне 5 нм.

В плоскости изображения помещают исследуемый образец. Прошедшее через образец излучение регистрирует детектор (pin-диод, микроканальная пластина), синхронизованный с электронными банчами синхротрона. Для реконструкции 3D-структуры образец помещают на столик-сканер, осуществляющий перемещение образца по трем координатам *x*, *y*, *z* с нанометровой точностью. В качестве сканера выбран столик от компании PI модели P-561.3DD. Технические характеристика сканера, взятые из [24], приведены в табл. 3.

Методика проведения измерений и реконструкция 3D-структуры аналогичны конфокальной микроскопии, за исключением отсутствия флуорофоров и того, что полезный сигнал формируется по всему объему образца, в то время как в конфокальной микроскопии сигнал дают только области с флуорофором. Образцы для исследований могут быть как зафиксированы с использованием заморозки в парах жидкого азота, так и помещены в специальные кюветы при нормальных условиях.

Для уменьшения деформаций волнового фронта и обеспечения размерной стабильности рентгенооптической схемы в условиях мощных рентгеновских потоков первое зеркало двухзеркальной системы будут охлаждать жидким азотом или водой, что будет определено при более де-

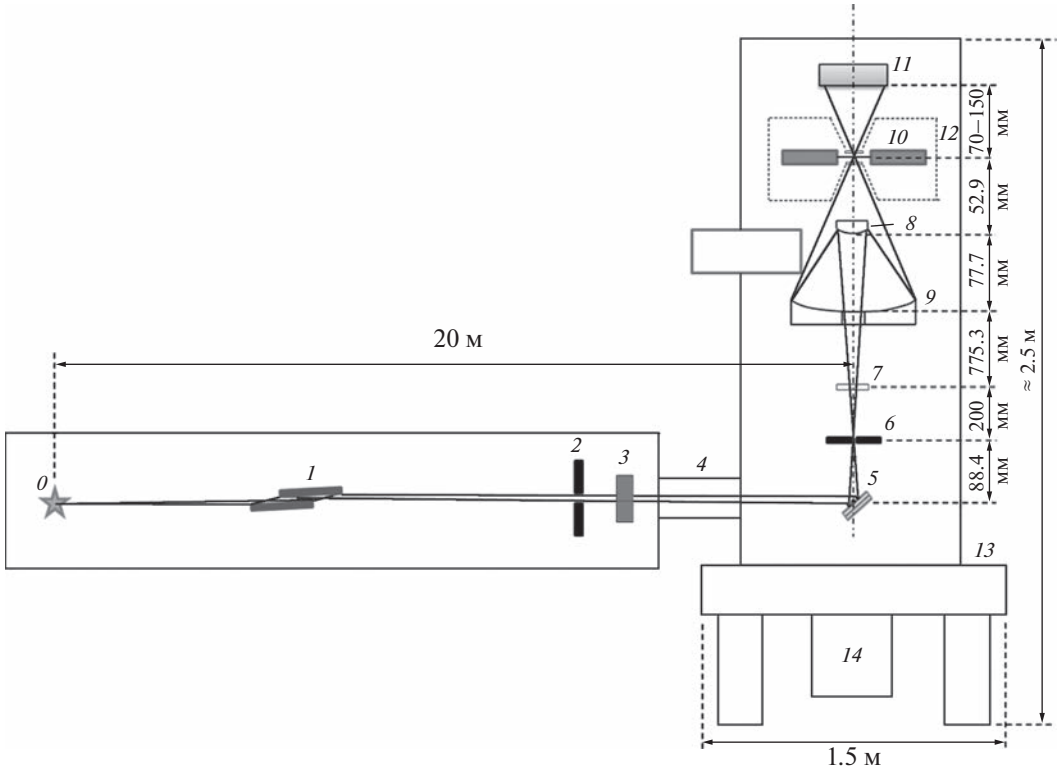


**Рис. 4.** Рентгенооптическая схема сканирующего микроскопа на станции “Наноскопия”: *1* – два плоских зеркала; *2* – выходная апертура фронтенда; *3* – визуализатор рентгеновского пучка; *4* – сильфон с шиберами; *5* – линза Брэгга–Френеля; *6* – диафрагма; *7* – набор фильтров; *8* – первичное зеркало *M*1 объектива 54 крат; *9* – вторичное зеркало *M*2 объектива 54 крат; *10* – образец; *11* – детектор; *12* – криокамера; *13* – система виброизоляци; *14* – вакуумная система.

**Таблица 2.** Оптические элементы станции “Наноскопия”

| № | Элемент | Расстояние от предыдущего элемента | Описание |
|---|---|---|---|
| 0 | Источник СИ | 0 | Ондулятор |
| 1 | Два плоских зеркала | 15 м | Охлаждаемый фильтр гармоник – аттенюатор интенсивности пучка |
| 2 | Выходная апертура фронтенда | 13 м | Система охлаждаемых щелей, выделяющих центральный конус излучения с $NA = 25$ мкрад |
| 3 | Визуализатор рентгеновского пучка | 0.5 м | Мониторы положения и интенсивности пучка |
| 4 | Сильфон с шиберами | 0.5 м | |
| 5 | Линза Брэгга–Френеля | 1 м | Многослойное зеркало Cr/Sc с эллиптической зонной пластинкой на поверхности, наклонено на 45°. Рабочая область – эллипс ($2a = 1.4$ мм, $2b = 1$ мм), охлаждается $LN_2$ |
| 6 | Диафрагма | 88.4 мм | Диафрагма размером 1 мкм, охлаждаемая $H_2O$ |
| 7 | Набор фильтров | 200 мм | Многослойные фильтры для контроля потока падающего излучения |
| 8 | Первичное зеркало $M1$ | 853 мм | Выпуклое зеркало Cr/Sc объектива Шварцшильда, строящего изображение диафрагмы 1 мкм на образце с уменьшением в 54 раза. $R = -28.2$ мм, $D = 12$ мм $NA = 0.4$ |
| 9 | Вторичное зеркало $M2$ | 77.7 мм | Вогнутое зеркало Cr/Sc объектива Шварцшильда. $R = -107.6$ мм, $D = 78$ мм |
| 10 | Образец | 130.6 мм | Образец на $X,Y,Z$-сканере с обратной связью (табл. 3) |
| 11 | Детектор | 70–150 мм | Pin-диод или микроканальная пластина, регистрирующий сигнал, прошедший через наблюдаемые точки образца |
| 12 | Криокамера | | Предусмотрена возможность установки криокамеры с охлаждением образца парами $LN_2$ |
| 13 | Система виброизоляции | | Оптический стол; пружинный подвес оптической фермы; магнитный демпфер на токах Фуко |
| 14 | Вакуумная система | | Высоковакуумная откачка |

тальной проработке, второе зеркало – водой. Последующие элементы в силу достаточно малой мощности очищенного от гармоник излучения не требуют принудительного охлаждения, и достаточно будет пассивного (радиаторного) охлаждения.

Для сохранения размерной стабильности рентгенооптической схемы при ее разработке будут использованы материалы с низкими, на уровне $10^{-8}$–$10^{-7}$ $K^{-1}$, температурными коэффициентами линейного расширения (ULE, астроситалл и титан-ниобиевый сплав ТВ-36). Кроме того, корпус объектива будет термостабилизирован.

## ОЦЕНКА ИНТЕНСИВНОСТИ ЗОНДОВОГО ПУЧКА В СКАНИРУЮЩЕМ МЯГКОМ РЕНТГЕНОВСКОМ МИКРОСКОПЕ

Оценка интенсивности зондового пучка *PBI* может быть определена из следующего соотношения:

$$PBI = I_{SR}\Delta\lambda_M R_{BFL} R_{GIM}^2 R_{MLM}^2 \ [\text{фотон/с}], \qquad (2)$$

где $I_{SR}$ – интенсивность излучения из ондулятора, выраженная в фотонах, излученных в секунду в спектральной полосе 0.1%; $\Delta\lambda_M$ – спектральная полоса пропускания оптической системы, выраженная в долях полосы 0.1%; $R_{BFL}$ – эффектив-

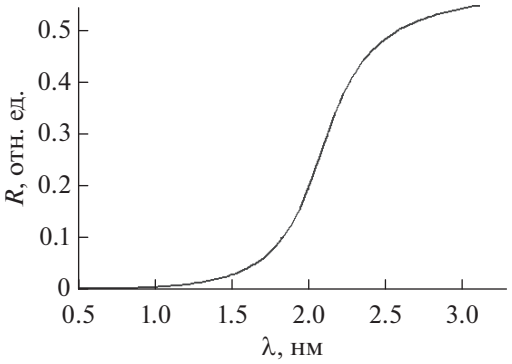


**Рис. 5.** Фильтр гармоник. Спектральная зависимость коэффициента отражения кремниевого зеркала при скользящем угле падения 3°. Подавление второй гармоники при двукратном отражении достигает 260.

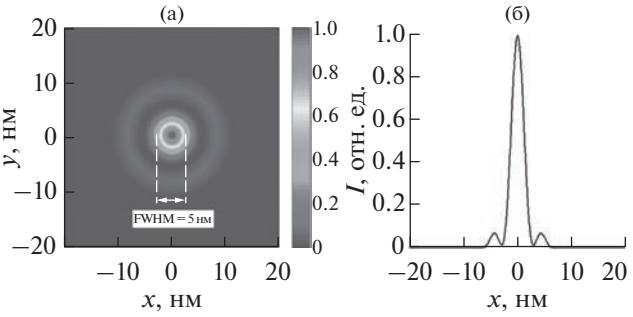


**Рис. 6.** Изображение (а) и поперечное сечение фокуса (б) зондового рентгеновского пучка в схеме сканирующего мягкого рентгеновского микроскопа.

ность линз Брэгга–Френеля; $R_{GIM}$ – коэффициент отражения зеркала скользящего падения; $R_{MLM}$ – коэффициент отражения многослойного зеркала Cr/Sc. Подставив в соотношение (2) ожидаемые величины $I_{SR} = 5.6 \times 10^{15}$ фотон/с (табл. 1), $\Delta\lambda_M = 2.4$ (полоса пропускания микроскопа 0.24%), $R_{BFL} = 0.3$, $R_{GIM} = 0.8$ (значение после оптимизации покрытия зеркала) и $R_{MLM} = 0.2$ (современный уровень изготовления зеркала Cr/Sc), получим $PBI = 1 \times 10^{14}$ фотон/с.

## ОЦЕНКА ПОГЛОЩЕННОЙ ДОЗЫ В ЗАВИСИМОСТИ ОТ ПРОСТРАНСТВЕННОГО РАЗРЕШЕНИЯ

Для получения качественных рентгеновских изображений необходимо, чтобы число зарегистрированных событий было как минимум 25. В этом случае пуассоновский шум составит 20%. Так как контраст изображений между водой и протеинами превышает 10, для оценки можно считать, что все акты поглощения (события) происходят в протеине. В этом случае для обеспечения разрешения с латеральным размером $d$ в кубике с объемом $d^3$ должно быть поглощено 25 фо-

**Таблица 3.** Характеристики *X*,*Y*,*Z*-столика образца марки PI модели P-561.3DD (взяты из [24])

| Характеристика | P-561.3DD |
|---|---|
| Направление перемещения | *X*, *Y*, *Z* |
| Скорость смещения, мм/с | 0.2 |
| Встроенный сенсор | Емкостный |
| Диапазон перемещений без обратной связи (от –20 до +120 В), мкм | 58 × 58 × 18 |
| Диапазон перемещений с обратной связью, мкм | 45 × 45 × 15 |
| Разрешение без обратной связи, нм | 0.1 |
| Разрешение с обратной связью, нм | 0.2 |
| Нелинейность, % | 0.01 |
| Точность повторного позиционирования *X*, *Y*, *Z*, нм | 2 |
| Отклонение от поперечной оси (Pitch) при движении по осям *X*, *Y*, мкрад | ±3 |
| Отклонение от осей *X*, *Y* при движении по оси *Z* (Runout), мкрад | ±3 |
| Отклонение от вертикальной оси (Yaw) при движении по осям *X*, *Y*, мкрад | ±3 |
| Плоскопараллельность в плоскости *X*, *Y*, нм | ±10 |
| Перекрестное влияние вдоль осей *X*, *Y* (Crosstalk) при движении по оси *Z*, нм | ±20 |
| Диапазон рабочих температур, °C | от –20 до +80 |
| Материал | Алюминий |
| Масса, кг | 1.55 |
| Длина кабеля, м | 1.5 |
| Рекомендуемый контроллер | E-725, E-712 |

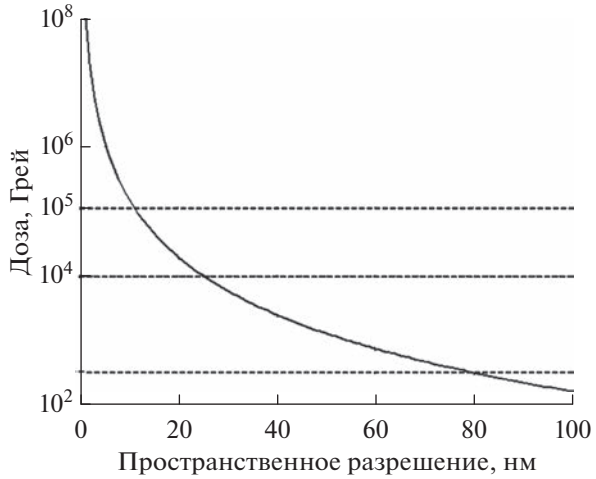


**Рис. 7.** Зависимость дозы от пространственного разрешения в сканирующем мягком рентгеновском микроскопе. Сплошные горизонтальные линии отмечают уровень доз, ниже которых незамороженные клетки сохраняют свою жизнедеятельность (верхние – для растений, нижняя – для животных).

тонов. Соответственно, в схеме сканирующего мягкого рентгеновского микроскопа поглощенная доза $D$ [Грей] может быть выражена в виде:

$$D(d) = 1.6\times10^{-19}\, NE_{\text{ph}}\big/(d^3\rho), \qquad (3)$$

где $N$ – число фотонов, необходимых для восстановления изображения, $E_{\text{ph}}$ – энергия фотона [эВ], множитель – перевод энергии из электронвольт в джоули, ρ – плотность. Подставив ожидаемые величины ($N = 25$, $E_{\text{ph}} = 397$ эВ, $\rho = 10^3$ кг/м$^3$), выражение (3) можно переписать в виде, показывающем зависимость дозы от разрешения $d$:

$$D(d) = 1.6\times10^8\big/d^3\ \left[\text{Грей}\big/\text{нм}^3\right]. \qquad (4)$$

На рис. 7 приведена зависимость требуемой дозы от разрешения, рассчитанная по (4). Из приведенной зависимости можно выделить следующее. Во-первых, даже при разрешении 1 нм необходимая доза не превышает допустимой $10^8$ Грей [26] для сохранения замороженных клеток в нативном состоянии, поэтому разрешение ограничивается уже не дозой, а размером зондового пучка 5 нм. Во-вторых, предельно допустимая доза 300 Грей, при которой сохраняется жизнедеятельность клеток животного происхождения [2], соответствует предельному разрешению 80 нм. В-третьих, предельно допустимая доза $10^4$–$10^5$ Грей, при которой сохраняется жизнедеятельность клеток растений [27, 28], соответствует предельному разрешению 10–25 нм.

## ОЦЕНКА ВРЕМЕНИ ЭКСПОЗИЦИИ ДЛЯ ВОССТАНОВЛЕНИЯ 3D-СТРУКТУРЫ В СКАНИРУЮЩЕМ МЯГКОМ РЕНТГЕНОВСКОМ МИКРОСКОПЕ

Без учета временных потерь на перемещение сканера необходимое время для получения 3D томографических данных $T_{\text{exp}}$ определяется размером образца $L \times W \times H$, разрешением $d$, интенсивностью пробного пучка на образце $PBI$ и числом фотонов $N_{\text{ph}}$, поглощенных в кубе со стороной, равной разрешению. Взаимосвязь между этими параметрами может выть выражена в виде:

$$T_{\text{exp}} = (N_{\text{ph}}LWH)\big/(PBId^3)\ [\text{с}]. \qquad (5)$$

Для образца кубической формы (5) можно переписать в виде:

$$T_{\text{exp}} = (N_{\text{ph}}L^3)\big/(PBId^3)\ [\text{с}]. \qquad (6)$$

Подставив в (6) значения $N_{\text{ph}} = 25$ фотонов и $PBI = 1\times10^{14}$ фотон/с, получим

$$T_{\text{exp}} = 2.4\times10^{-13}\, L^3\big/d^3\ [\text{с}]. \qquad (7)$$

Например, для клетки размером 10 × 10 × 10 мкм и разрешения 20 нм потребуется время $3\times10^{-5}$ с. Таким образом, основным ограничением выступает не мощность источника рентгеновского излучения, а скорость перемещений сканера. Для рассмотренного случая время полного сканирования составит около 3.5 ч. Так как время сканирования обратно пропорционально кубу пространственного разрешения (т.е. кубу шага сканирования), при изучении динамических процессов, где ожидаемое разрешение составит 80 нм, время измерений клетки размером 10 × 10 × 10 мкм сократится примерно до 3 мин, а ее фокального среза до 15 мс!

## ПОЛНОПОЛЬНЫЙ ПРОЕКЦИОННЫЙ МИКРОСКОП

Первая половина проекционной схемы (элементы *0*–*7* на рис. 8) в точности повторяет сканирующую схему (рис. 4). Далее идет двухзеркальный объектив-осветитель, состоящий из зеркал *8* и *9*. В отличие от объектива сканирующей схемы он должен собирать излучение не в точку, а подсвечивать поле зрения размером 16.6 × 16.6 мкм (равно размеру матрицы детектора 13.3 × 13.3 мм, деленному на увеличение 800 крат) на образце *10*, поэтому требование к точности формы оптики у него умеренные. Изображение образца с увеличением проецируется трехзеркальным объективом *11*–*13* (рис. 8) на матричную камеру *14*. Увеличение 800 крат оптимально, чтобы, с одной стороны, размер пикселя в предметной области был мал и равен 8 × 8 нм, а с другой, поле зрения было достаточно для наблюдения большинства клеток. Описание основных элементов проекционной

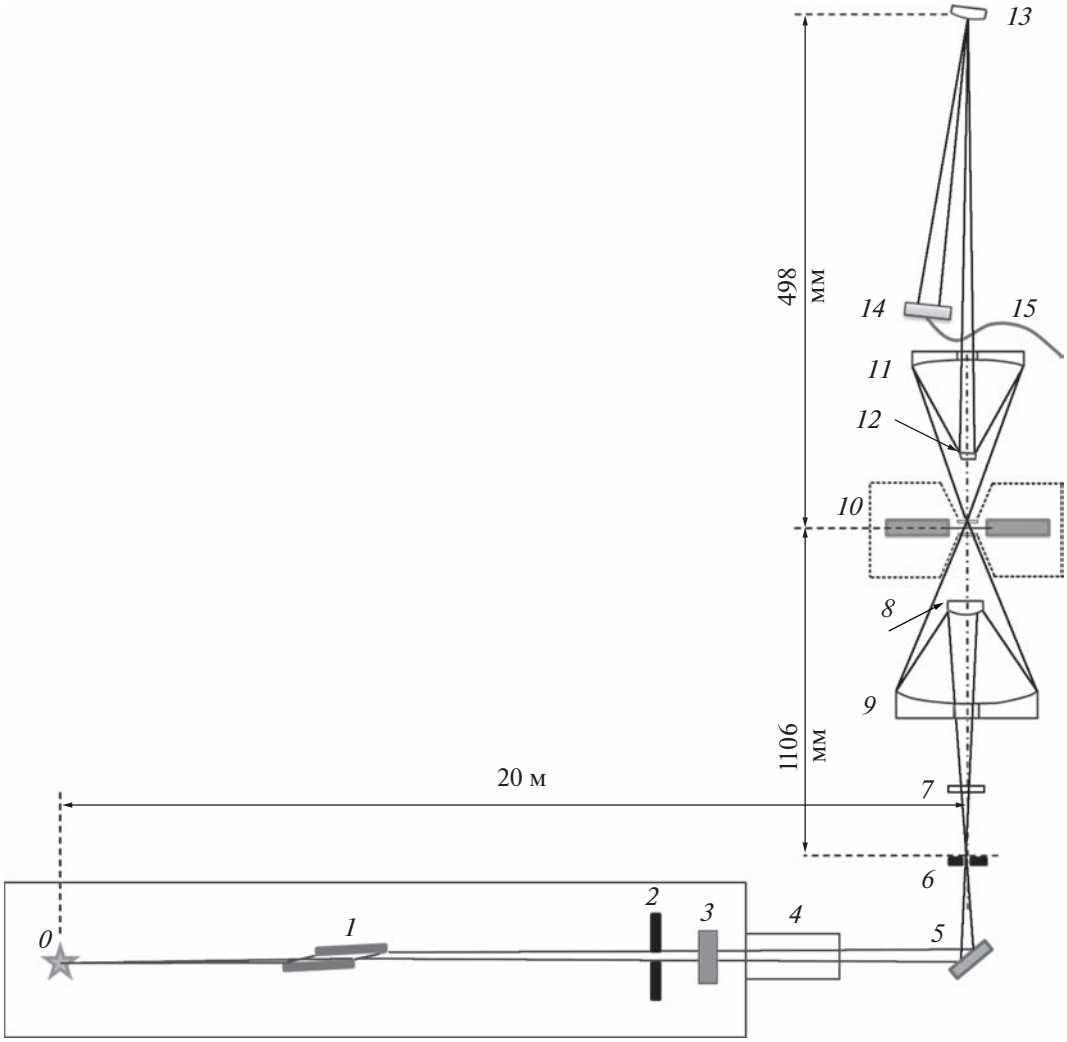


**Рис. 8.** Рентгенооптическая проекционная схема канала и станции. Обозначения как на рис. 4.

схемы и их взаимное расположение приведено в табл. 4.

Высота проекционного объектива составила около 500 мм, ширина 100 мм – достаточно компактные для такого большого увеличения. Диаметр малого выпуклого зеркала 12.6 мм достаточно большой, поэтому удобен для механической и ионной полировки шероховатой поверхности и нанесения отражающего многослойного покрытия. Расчетные аберрации объектива для всех полевых точек субнанометровые. Это обеспечивает близкую к дифракционному пределу (рис. 9а, верхняя кривая) долю энергии пятна фокусировки в одном пикселе размером 6.5 мкм – от 51 до 62% в зависимости от полевой точки. На рис. 9б показано, как пятно фокусировки на регистрирующей матрице укладывается в пиксели.

Запись и обработка изображений образца будет осуществляться следующим образом. Образец будет сдвигаться вдоль оптической оси, и будет получена серия изображений его срезов $I(x', y')$, где $x', y'$ – координаты на регистрирующей матрице. Далее в стандартных программах, например в ImageJ с плагином Deconv.Lab2 [29], итерационно решается уравнение:

$$\mu = -\ln\left(I/I_0\right)\Big/\Delta L \otimes^{-1} h, \qquad (8)$$

где $I_0$ – интенсивность поля засветки образца, когда образца нет, $h$ – функция рассеяния точки с учетом дифракции, аберраций и конусного схождения лучей в изображаемую точку и конусного выхождения из нее, $\mu(x, y, z)$ – искомый трехмерный коэффициент поглощения структур клетки, $\otimes^{-1}$ – оператор деконволюции. Для улучшения качества изображения перед деконволюцией будут устранять шум, делать нормировку средней интенсивности в $XY$-срезах и устранять $XY$-смещения при $Z$-скане. Такой подход отлично зарекомендовал себя при реконструкции трехмерных

**Таблица 4.** Оптические элементы проекционного микроскопа для станции “Наноскопия”

| № | Элемент | Расстояние от предыдущего элемента, мм | Описание |
|---|---|---|---|
| 0 | Источник СИ | 0 | Ондулятор |
| 1 | Два плоских зеркала | 15000 | Охлаждаемый фильтр гармоник – аттенюатор интенсивности пучка |
| 2 | Выходная апертура фронтенда | 3000 | Система охлаждаемых щелей, выделяющих центральный конус излучения с $NA = 25$ мкрад |
| 3 | Визуализатор рентгеновского пучка | 500 | Мониторы положения и интенсивности пучка |
| 4 | Сильфон с шиберами | 500 | |
| 5 | Линза Брэгга–Френеля | 1000 | Многослойное зеркало Cr/Sc с эллиптической зонной пластинкой на поверхности, наклонено на 45°. Рабочая область – эллипс ($2a = 1.4$ мм, $2b = 1$ мм), охлаждается $H_2O$ или $LN_2$ |
| 6 | Диафрагма | 88 | Диафрагма, охлаждаемая $H_2O$ |
| 7 | Набор фильтров | 200 | Многослойные фильтры для контроля потока падающего излучения |
| 8 | Первичное зеркало конденсорного объектива Шварцшильда | 853 | Выпуклое зеркало Cr/Sc конденсорного объектива Шварцшильда, увеличивающего апертуру пучка в 50 раз до 0.28 и создающего равномерное поле засветки на образце. $R = -28.2$ мм, $D = 12$ мм |
| 9 | Вторичное зеркало конденсорного объектива Шварцшильда | 77 | Вогнутое зеркало Cr/Sc конденсорного объектива $R = -107.6$ мм, $D = 78$ мм |
| 10 | Образец | 130 | Образец на $Z$-сканере с обратной связью |
| 11 | Первичное зеркало объектива ×800 | 166.3 | Вогнутое зеркало проекционного объектива $R = 133.3$ мм, $D = 100$ мм, $D_{\text{световой}} = 92$ мм |
| 12 | Вторичное зеркало объектива ×800 | 95.9 | Выпуклое зеркало проекционного объектива $R = -31.1$ мм, $D = 12.6$ мм |
| 13 | Третичное зеркало объектива ×800 | 401.4 | Выпуклое зеркало проекционного объектива $R = -16.3$ мм, $D = 20$ мм, $D_{\text{световой}} = 0.6$ мм |
| 14 | Регистрирующая матрица | 265, угол 4° к горизонтали | GPIXEL GSENSE2020BSI PulSar с размером поля 2048 × 2048 пикселей и размером пикселя 6.5 мкм |
| 15 | Охлаждение матрицы | | Медный хладопровод, от “холодного пальца”, охлаждаемого парами жидкого азота с наружи вакуумной камеры |

изображений в запущенном в работу лабораторном микроскопе экстремального ультрафиолетового излучения с абсорбционным контрастом [29].

## ОЦЕНКА ВРЕМЕНИ ЭКСПОЗИЦИИ ДЛЯ ВОССТАНОВЛЕНИЯ 3D-СТРУКТУРЫ В ПРОЕКЦИОННОЙ СХЕМЕ

Время томографии складывается из времени на $z$-перемещение столика и времени экспозиции всех кадров $T_{\text{exp}}$. Время на $z$-перемещение столика на 30 мкм составляет 0.15 с, так как скорость движения столика от компании PI составляет 0.2 мм/с [24]. Время на экспозицию всех кадров $T_{\text{exp}}$ определяется по формуле:

$$T_{\text{exp}} = \frac{C_{\text{pix}} E_e N_{\text{pix}}}{E_p PBI} \frac{H}{\Delta h} k, \qquad (9)$$

где $C_{\text{pix}} = 55 \times 10^3 \overline{e}$ – емкость пикселя, $E_e = 3.6$ эВ – энергия, затрачиваемая на рождение одной электронно-дырочной пары в полупроводниковом пикселе, $E_p = 397$ эВ – энергия фотона с длиной волны 3.12 нм, $PBI = 1 \times 10^{12}$ с$^{-1}$ – интенсивность

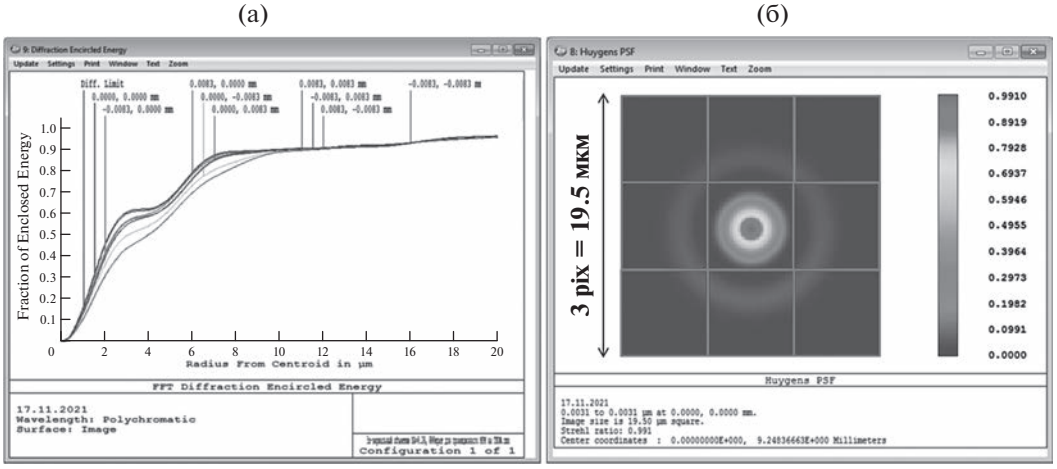


**Рис. 9.** Распределение энергии в пятне фокусировки для разных полевых точек (центра и краев матрицы (а). Пятно фокусировки в центре поля зрения на регистрирующей CMOS-матрице GPIXEL 2020BSI Pulsar (б).

подсвечивающего образец пучка с учетом отражения от пяти зеркал [30], $\frac{H}{\Delta z}$ – число шагов по оси $z$, $H = 20$ мкм – перемещение столика по оси $z$ для съемки образца толщиной 10 мкм и его окружения, $\Delta z = 16$ нм – $z$-шаг; $k$ – коэффициент ослабления интенсивности из-за поглощения в образце. Например, при прохождении излучения с длиной волны 3.12 нм через образец (клетку 10 × × 10 × 10 мкм в слое льда толщиной 20 мкм) коэффициент

$$k = \exp(-(\mu_{\text{льда}} H_{\text{льда}} + \mu_{\text{белка}} H_{\text{белка}})) \approx \approx \exp\left(-\left(1/4\right) 20\right) \approx 150. \quad (10)$$

Подставив эти числа в (9), получим, что $T_{\text{exp}} = 10$ мин. Так как это время рассчитано из условия, что вся емкость пикселей заполнена, шумы должны быть малы, а это очень важно для деконволюционной реконструкции 3D-изображения.

Оценим время на сохранение кадров в памяти компьютера для толщины 20 мкм с $z$-шагом 16 нм. Оно составит 10 мин при скорости сохранения 2 кадр/с. Так как это время равно времени экспозиции всех кадров, накопление сигнала и сохранение в памяти кадра, полученного на предыдущем $z$-шаге, могут быть реализованы одновременно, поэтому время томографии не увеличится и составит те же 10 мин.

Таким образом, сканирующая схема лучше подходит для изучения живых образцов, потому что обеспечивает на три порядка меньшую дозу, а проекционная схема – для изучения химически фиксированных или замороженных образцов, потому что время съемки меньше примерно в 300 раз.

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Описана концепция и рентгенооптическая схема станции “Наноскопия”, которая планируется к установке на синхротроне четвертого поколения СКИФ. Станция предназначена для изучения строения клеток и динамических процессов в них с нанометровым пространственным разрешением в спектральной области “окна прозрачности воды”. Новизной подхода является использование для формирования зондового пучка многослойных рентгеновских зеркал. Благодаря большой числовой апертуре объектива Шварцшильда по сравнению с зонной пластинкой Френеля глубина фокуса (область острой фокусировки) зондового пучка составляет $DoF = \lambda/NA^2 = 20$ нм для $\lambda = 3.12$ нм и $NA = 0.4$, что позволяет для восстановления объемной структуры использовать $Z$-томографию вместо более сложной, менее точной и увеличивающей поглощенную в образце дозу угловой томографии. Также малая глубина фокуса дает возможность изучения динамики живых клеток с нанометровым разрешением путем слежения за остро изображаемым фокальным срезом в сканирующей схеме (с временны́м разрешением миллисекунды) или путем полного $XYZ$-скана (с временным разрешением единицы минут).

При построении схем рентгеновского микроскопа впервые предложена гибридная схема транспортировки пучка до образца, включающая оптику Брэгга–Френеля и зеркальную оптику, которая позволяет работать с пучками рентгеновского излучения малых размеров.

Проведенные расчеты показывают, что во всем диапазоне разрешений, которые обеспечивает мягкая рентгеновская микроскопия, благодаря уникальному абсорбционному контрасту между протеинами и водой можно изучать даже

живые образцы с разрешением до 10 нм (для клеток растений), а замороженные – с разрешением до 5 нм в сканирующей схеме и до 8 нм в проекционной схеме.

Ожидаем, что работы на станции позволят найти новые ниши для микроскопии в “окне прозрачности воды”, а также позволят продвинуться в разрешении и скорости проведения исследований по сравнению с аналогичными микроскопами, установленными на синхротронах.

## БЛАГОДАРНОСТИ

Работа выполнена при поддержке РНФ (грант № 22-62-00068).

**Конфликт интересов:** авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Hanssen E., Knoechel C., M. Dearnley M. et al.* // J. Struct. Biol. 2012. V. 177. № 2. P. 224. https://doi.org/10.1016/j.jsb.2011.09.003
2. *Kirz J.* // Q. Rev. Biophys. 1995 V. 28. P. 33. https://doi.org/10.1017/s0033583500003139
3. *Eltsov M., Grewe D., Lemercier N. et al.* // Nucl. Acids Res. 2018. V. 46. № 17. P. 9189. https://doi.org/10.1093/nar/gky670
4. *Hell S.W., Wichmann J.* // Opt. Lett. 1994. V. 19. № 11. P. 780. https://doi.org/10.1364/OL.19.000780
5. *Späth A., Schöll S., Riess C. et al.* // Ultramicroscopy. 2014. V. 144. P. 19. https://doi.org/10.1016/j.ultramic.2014.04.004
6. *Vila-Comamala J., Jefimovs K., Raabe J. et al.* // Ultramicroscopy. 2009. V. 109. № 11. P. 1360. https://doi.org/10.1016/j.ultramic.2009.07.005
7. *Späth A., Raabe J., Fink R.H.* // J. Synchr. Radiat. 2015. V. 22. № 1. P. 113. https://doi.org/10.1107/S1600577514022322
8. *Kotani Y., Senba Y., Toyoki K. et al.* // J. Synchr. Radiat. 2018. V. 25. № 5. P. 1444. https://doi.org/10.1107/S1600577518009177
9. *Takman P.A.C., Stollberg H., Johansson G.A. et al.* // J. Microscopy. 2007. V. 226. № 2. P. 175. https://doi.org/10.1111/j.1365-2818.2007.01765.x
10. *Larabell C.A., Le Gros M.A.* // Mol. Biol. Cell. 2004. V. 15. № 3. P. 957. https://doi.org/10.1091/mbc.E03-07-0522
11. *Малышев И.В., Пестов А.Е., Полковников В.Н. и др.* // Поверхность. Рентген., синхротр. и нейтрон. исслед. 2019. № 1. С. 3. https://doi.org/10.1134/S0207352819010128
12. *Schneider G., Guttmann P., Heim S. et al.* // Nat. Methods. 2010. V. 7. Iss. 12. P. 985. https://doi.org/10.1038/nmeth.1533
13. *Chkhalo N.I., Malyshev I.V., Pestov A.E. et al.* // Appl. Opt. 2016. V. 55. № 3. P. 619. https://doi.org/10.1364/AO.55.000619
14. *Turkot B.* // Proc. SPIE. 2016. V. 9776. P. 977602. https://doi.org/10.1117/12.2225014
15. *Pirati A., v. Schoot J., Troost K. et al.* // Proc. SPIE. 2017. V. 10143. P. 101430G. https://doi.org/10.1117/12.2261079
16. *Gullikson E.M., Salmassi F., Aquila A.L., Dollar F.* Lawrence Berkeley National Laboratory: Berkeley, CA, USA, 2006. http://escholarship.org/uc/item/8hv7q0hj (accessed on 20 June 2008).
17. *Jingtao Z., Haochuan L., Hongchang W. et al.* PXRNM workshop-2016, 2016. https://www.utwente.nl/en/tnw/xuv/workshops/archive/pxrnm-workshop-2016/program/pxrnms-2016-abstracts-poster-presentations.pdf.
18. *Burcklen C., de Rossi S., Meltchakov E. et al.* // Opt. Lett. 2017. V. 42. № 10. P. 1927. https://doi.org/10.1364/OL.42.001927
19. *Andreev S.S., Bibishkin M.S., Chkhalo N.I. et al.* // J. Synchr. Radiat. 2003. V. 10. Iss. 5. P. 358. https://doi.org/10.1107/S0909049503015255
20. *Bibishkin M.S., Chkhalo N.I., Fraerman A.A. et al.* // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A. 2005. V. 543. № 1. P. 333. https://doi.org/10.1016/j.nima.2005.01.251
21. *Akhsakhalyan A.D., Kluenkov E.B., Lopatin A.Ya. et al.* // J. Surf. Invest.: X-ray, Synchrotron Neutron Tech. 2017. V. 11. № 1. P. 1. https://doi.org/10.1134/S1027451017010049
22. *Полковников В.Н., Гарахин С.А., Квашенников Д.С., Малышев И.В., Салащенко Н.Н., Свечников М.В., Смертин Р.М., Чхало Н.И.* // ЖТФ. 2020. V. 90(11), P. 1893.
23. *Chkhalo N.I., Malyshev I.V., Pestov A.E. et al.* // Physics-Uspekhi. 2020. V. 63. № 1. P. 67. https://doi.org/10.3367/UFNe.2019.05.038601
24. http://www.eurotek-general.ru/products/systems_pi/multicoordinate/p-561-p-562-p-563-pimars/"\l “ad-image-0
25. *Schelokov I.A., Roshchupkin D.V., Kondakov A.S. et al.* // Optics Commun. 1999. V. 159. № 4–6. P. 278. https://doi.org/10.1016/S0030-4018(98)00598-7
26. *Schneider G., Niemann B.* // X-ray Sci. 1994. V. 2. P. 8.
27. *Gilbert J.R.* Soft X-Ray Microimaging of Whole Wet Cells. PhD thesis, California Institute of Technology, Pasadena, California, 1992.
28. *Chkhalo N.I., Malyshev I.V., Pestov A.E., Polkovnikov V.N., Reunov D.G., Salashchenko N.N., Shchelokov I.A.* X-ray Optical Scheme for Station “Nanoscope” for Biological Research in the Water Window. Synchrotron and Free Electron Laser Radiation: Generation and Application (SFR-2020). https://doi.org/10.1063/5.0031702
29. *Малышев И.В., Реунов Д.Г., Чхало Н.И. и др.* // Матер. XXVI Междунар. симп. “Нанофизика и наноэлектроника”. Нижний Новгород, 14–17 марта 2022. Т. 1. С. 562.
30. *Sage D., Donati L., Soulez F. et al.* // Methods-Image Processing for Biologists. 2017. V. 115. P. 28. https://doi.org/10.1016/j.ymeth.2016.12.015

# Project of Scanning and Projection Microscopes for the Nanoscopy Station for Biological Research in the "Water Transparency Window"

**I. V. Malyshev[1, *], A. E. Pestov[1], V. N. Polkovnikov[1], D. G. Reunov[1], M. N. Toropov[1], N. I. Chkhalo[1], Ya. V. Rakshun[2], Yu. V. Khomyakov[2], V. A. Chernov[2], I. A. Shchelokov[3]**

*[1]Institute for Physics of Microstructures of RAS, Nizhny Novgorod, 603950 Russia*

*[2]Institute of Nuclear Physics G.I. Budker of the Siberian Branch RAS, Novosibirsk, 630090 Russia*

*[3]Institute for Problems of Microelectronics Technology and High Purity Materials of RAS, Chernogolovka, 142432 Russia*

**e-mail: ilya-malyshev-wot@yandex.ru*

A brief description of the concept of a soft X-ray microscope for the Nanoscopy station is given, which is planned to be installed at the SKIF fourth-generation synchrotron. The microscope will be designed to study the structure of cells and dynamic processes in them with nanometer spatial resolution. It will use a unique absorption contrast of ~15 between carbon-containing structures and water in the spectral range of the "water transparency window", $\lambda = 2.3–4.3$ nm, which eliminates the need for contrasting and the use of fluorophores and minimizes the doses of ionizing radiation absorbed in the samples to obtain high-quality 3D-images. The scanning and projection schemes of the microscope, their main technical characteristics, including the calculated spectra and parameters of the undulator source are presented, and an estimate of the absorbed doses depending on the resolution is obtained. The main advantage of the proposed concept lies in the use of an objective of high-aperture multilayer X-ray mirrors, which makes it possible to clearly visualize the focal section of the sample. Technically simple axial tomography will also be used to reconstruct the three-dimensional structure of frozen or dried samples. In the scanning scheme, due to the low dose of radiation, it will be possible to study living plant cells with a resolution of up to 10 nm, animals with a resolution of up to 80 nm, and cryofixed samples with a resolution of up to 5 nm. In the projection scheme, due to the simultaneous observation of the entire focal *XY*-section, the time for obtaining three-dimensional images is significantly reduced, but due to the large dose, it will be oriented mainly on the study of fixed samples.

**Keywords:** soft X-ray microscopy, "water transparency window", synchrotron radiation, SKIF synchrotron station, study of living cells with nanometer resolution.

УДК 537.58.543.51

# ОПРЕДЕЛЕНИЕ КИНЕТИЧЕСКИХ ХАРАКТЕРИСТИК ТЕРМОДЕСОРБЦИИ И ГЕТЕРОГЕННОЙ РЕАКЦИИ ДИССОЦИАЦИИ МОЛЕКУЛ МОРФИНА НА ПОВЕРХНОСТИ ОКИСЛЕННОГО ВОЛЬФРАМА

**© 2023 г. Г. Т. Рахманов[a], *, Б. Е. Умирзаков[c], Д. Т. Усманов[b]**

[a] *Национальный университет Узбекистана им. М. Улугбека, Ташкент, 100174 Узбекистан*

[b] *Ташкентский государственный технический университет, Ташкент, 100095 Узбекистан*

[c] *Институт Ионно-плазменных и лазерных технологий им. У.А. Арифова АН РУз, Ташкент, 100125 Узбекистан*

**e-mail: rakhmanov.gt@mail.ru*

Поступила в редакцию 15.08.2022 г.
После доработки 30.10.2022 г.
Принята к публикации 30.10.2022 г.

В одинаковых экспериментальных условиях нестационарными методами поверхностной ионизации – методом модуляции напряжения и методом модуляции потока – исследованы процессы адсорбции, гетерогенной реакции диссоциации на поверхности и термодесорбция молекул морфина $C_{17}H_{19}NO_3$ (с отношением массы к заряду $m/z$ 285 а. е. м.) на поверхности окисленного вольфрама. Эксперименты были проведены на высоковакуумном масс-спектрометре с использованием “черной камеры”, все стенки которой охлаждаются жидким азотом. Определены кинетические характеристики процессов термодесорбции и гетерогенной реакции диссоциации молекул на поверхности: константа скорости термодесорбции в ионном и в нейтральном состояниях $K^+$ и $K^0$, соответствующие энергии активации термодесорбции $E^+$ и $E^0$, предэкспоненциальные множители $C$ и $D$, а также константа скорости гетерогенной реакции диссоциации $K^d$ и энергия активации гетерогенной реакции диссоциации на поверхности, экспоненциальные множители в уравнении непрерывности поверхностной концентрации для радикалов $C_9H_7N^+CH_3$ (с отношением массы к заряду $m/z$ 144 а. е. м.) при адсорбции молекул морфина на поверхности окисленного вольфрама.

**Ключевые слова:** нестационарная поверхностная ионизация, метод модуляция потока, метод модуляция напряжения, морфин, адсорбция, радикалы, константы скорости и энергии активации термодесорбции.

**DOI:** 10.31857/S1028096023050151, **EDN:** KRJGEI

## ВВЕДЕНИЕ

В последние годы для развития таких областей, как нанотехнология и гетерогенный катализ, микроэлектроника, материаловедение и других, требуются детальное сведения о гетерогенных процессах на атомных и молекулярных уровнях. Особое развитие и усовершенствование получили исследования поверхностной ионизация в нестационарных условиях. Нестационарные процессы поверхностной ионизации используют для определения кинетических характеристик десорбирующихся частиц: среднее времена жизни адсорбированных частиц по отношению их десорбции как в заряженном, так и в нейтральном состояниях; энергии активации десорбции; энтропийные множители в уравнениях десорбции [1–3]. Система адсорбат–адсорбент, выведенная из состояния равновесия, через некоторое время приходит в новое состояние равновесия. Этот процесс изучают по изменению тока десорбирующихся частиц во времени, который, как известно, пропорционален концентрации ионизирующихся частиц на поверхности адсорбента. Изменение поверхностной концентрации $N(t)$ определяется уравнением непрерывности:

$$\frac{dN(t)}{dt} = v - K(T)N(T), \qquad (1)$$

где $v$ – поток частиц, поступающих на поверхность; $T$ – температура адсорбента; $K(T)$ – сумма констант скоростей частиц во время всех гетерогенных процессов, влияющих на поверхностную

концентрацию ионизируемых частиц. В случае поверхностной ионизации атомных потоков $K(T)$ определяется как сумма констант скоростей десорбирующихся атомов в заряженном $K^+ = C\exp(-E^+/kT)$ и нейтральном состояниях $K^0 = D\exp(-E^0/kT)$, где $E^+$ и $E^0$ – энергии активации десорбции, $C$ и $D$ – энтропийные множители. Для рассматриваемых органических молекул до сих пор не определены константы скоростей термодесорбции, энергии активации термодесорбции и характеристические времена гетерогенной реакции диссоциации на поверхности.

Однако молекулы морфина были хорошо изучены в стационарных условиях методом поверхностной ионизации [4–8]. Кроме этого, морфин был изучен методами масс-спектрометрии, такими как электронная ионизация, электроспрейная ионизация, химическая ионизация и др., в вакууме и в атмосферном воздухе [9–18].

## ТЕОРЕТИЧЕСКАЯ ЧАСТЬ

Нестационарные условии создают резким изменением потока частиц ν, поступающих на поверхность образца, (метод модуляции потока); изменением температуры $T$ (метод модуляции температуры) и изменением электрического поля, то есть условий отбора ионов (метод модуляции напряжения) [2].

Исследование поверхностной ионизации многоатомных молекул и радикалов органических соединений (в том числе, существующих в организме человека) [3] и установление правил ионообразования [1] привели к развитию и применению метода модуляции потока и метода модуляции напряжения для исследования многоатомных частиц. Было обнаружено, что для первичных молекул релаксация тока $I(t)$, как и в случае поверхностной ионизации атомов, экспоненциальная. Были определены не только константы скоростей термодесорбции исходных молекул в ионнизированном $K_M^+ = C\exp(-E_M^+/kT)$ и нейтральном $K_M^0 = D\exp(-E_M^0/kT)$ состояниях, но также константы скоростей гетерогенной реакции диссоциации исходных молекул $K_M^d = G\exp(-E_M^d/kT)$ в небольшом интервале температур. Поэтому по зависимости $\ln I(t) = f(t)$ можно определить средние времена жизни молекул $\overline{\tau}$ на поверхности образца:

$$\overline{\tau} = \frac{1}{K_M} = \frac{1}{K_M^+ + K_M^0 + K_M^d}. \qquad (2)$$

В случае поверхностной ионизации продуктов химической реакции первичных молекул на поверхности, поверхностная концентрация $i$-ых частиц $n_i(t)$ может быть получена из следующего уравнения:

$$\frac{dn_i(t)}{dt} + K_i(T)\,n_i(t) = v_i(t), \qquad (3)$$

где $K_i(T) = K_i^+ + K_i^0 + \Sigma K_{im}^d$, а эффективной поток $i$-ых частиц на поверхности $v_i(T) = N(t)\,K_{Mi}^d$, где $N(t)$ – концентрация исходных молекул, а $K_{Mj}^d$ – константа скорости реакции диссоциации исходной молекулы с образованием $i$-ой частицы. Решение уравнения (3), как в случае метода модуляции потока [19] и метода модуляции напряжения [20], показывает, что изменение $n_i(t)$ и, соответственно, ионного тока $i$-ых частиц $I_i(t)$ не следует экспоненциальному закону и зависит как от $K_M$, так и от $K_i$. Однако при применении метода модуляции напряжения можно выделить случаи, когда изменение тока $\Delta I_i$ и поверхностная концентрация $i$-ых частиц $\Delta n_i$ может быть описана следующим экспоненциальной зависимостью:

$$\Delta I \sim \Delta n_i = \Delta n_{\max}\exp\left(-tK_i(T)\right). \qquad (4)$$

Для этого необходимо, чтобы при изменении полярности электрического поля при применении метода модуляции напряжения не было увеличения поверхностной концентрации исходных молекул $N(t)$. Это возможно, если $K_M^+ \ll K_M^0 + K_M^d$, например, когда исходные молекулы не десорбируются в виде ионов из-за относительно высокого значения потенциала ионизации и превращения их на поверхности в другие частицы, ионизируемые путем поверхностной ионизации. Это часто встречаемый на практике поверхностной ионизации органических молекул случай, когда в виде ионов с большой эффективностью десорбируются продукты диссоциации молекул, а не десорбируются молекулярные ионы $(M–H)^+$ [1]. Поэтому кинетические характеристики термодесорбции некоторых многоатомных частиц, включая их радикалы – продукты реакции диссоциации исходных молекул, на поверхности окисленного вольфрама были определены экспериментально методом модуляции напряжения [2, 3, 19, 20].

В отличие от метода модуляции напряжения в методе модуляции потока для поверхностной ионизации продуктов реакция диссоциации исходных молекул не дает однозначных результатов. Решение уравнении (3) для этого случая было получено в [21]:

$$\Delta n_i = A\exp\left(-tK_M(T)\right) + B\exp\left(-tK_M(T)\right). \qquad (5)$$

Таким образом, как и при ионизации атомных потоков, так и при диссоциативной поверхностной ионизации молекул в условиях метода модуляции потока нарастание и спад поверхностной концентрации, и, соответственно, ионного тока

должен быть симметричен. Отличие же заключается в том, что при ионизации молекулярных потоков, в общем случае спад ионного тока не является экспоненциальной функцией. Скорость спада ионного тока зависит от всех процессов, приводящих к убыли молекул и регистрируемых частиц. Однако если получаемые в опытах зависимости $I_i(t) \sim n_i(t)$, оказываются экспоненциальными, то это означает, что в выражениях (5) главенствующую роль играет один из входящих в них членов. Если $K_M \ll K_i$, то в этом случае $I_i(t) \sim n_i(t) \sim A\exp(-K_M(T)t)$ и по изменению тока $i$-ых радикалов во времени можно определить вероятности убыли количества образующихся частиц на поверхности в результате гетерогенной реакции диссоциации исходных молекул и среднее время жизни исходных молекул, из которых частицы образуются на поверхности эмиттера. Если $K_M \gg K_i$, тогда $I_i(t) \sim n_i(t) \sim B\exp(-tK_i(T))$ в этом случае ток $i$-ых частиц определяется кинетическими характеристиками их термодесорбции. Чтобы установить, определяются ли по зависимостям $\ln I_i(t) = f(t)$ величины, относящиеся к радикалам ($i$) или молекулам ($M$), нужны дополнительные сведения. Эти сведения можно получить при изучении подобных систем, адсорбат–адсорбент при единых экспериментальных условиях методами модуляции напряжения и модуляции потока. В методе модуляции напряжения всегда определяют кинетические характеристики термодесорбции продуктов гетерогенной реакции диссоциации исходных молекул. Если кинетические характеристики, полученные этими двумя методами, совпадают, т.е. когда $K_M \gg K_i$, полученные характеристики можно отнести к ионизации продуктов гетерогенной реакции диссоциации исходных молекул на поверхности. Если же полученные результаты обоими методами не совпадают, то величины полученные методом модуляции потока можно отнести к кинетическим характеристикам исходных молекул ($K_M > K_i$). Если в системе адсорбат–адсорбент молекулы не десорбируются как молекулярные ионы, но диссоциируются на поверхности адсорбента с образованием легкоионизируемых путем поверхностной ионизации радикалов, то можно из (5) выбрать $K_M(T) \cong K^d_{Mi}(t)$. Поэтому использование методов модуляции напряжения и модуляции потока в единых экспериментальных условиях позволяет определить не только кинетические характеристики термодесорбции ионов радикалов – продуктов гетерогенной реакции диссоциации исходных молекул на поверхности, но также кинетические характеристики гетерогенной реакции диссоциации, константу скорости гетерогенной реакции диссоциации $K^d_M$, энергии активации $E^d_M$ и энтропийный множитель $G^*$ (верхний индекс означает, что реакции могут протекать по различным каналам). Это было показано, в наших предыдущих работах, при рассмотрении диссоциативной поверхностной ионизации двухатомных молекул щелочно-галоидных солей [21]. В настоящей статье приведены результаты исследования диссоциативной поверхностной ионизации органических соединений (молекул морфина) для которой можно применить нестационарные методы – метод модуляции напряжения и метод модуляции потока, то есть рассмотрен случай когда $K^+_M \cong 0$, $K_M \cong K^d_M$, $K^+_i \geq K^0_i$, $K^+_i \geq K^0_i + \sum_m K^d_{im}$.

## ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

В работе использована высоковакуумная установка для масс-спектрометрии (“τ-спектрометр”) [22]. Эмиттером (адсорбентом) служила вольфрамовая лента толщиной 10 мкм, длиной 40 мм и шириной 1 мм. После высокотемпературного отжига текстурированную вольфрамовую ленту окисляли в режиме, описанном в работе [21], и полученная окисленная вольфрамовая лента имела работу выхода $\varphi^*_u \cong 6.5$ эВ и $\varphi^*_э \cong 5.8$ эВ. Температуру эмиттера измеряли с помощью микропирометра ВИМП-015М. Потоки адсорбата получали путем испарения веществ из кнудсеновских ячеек, выполненных из кварцевого стекла.

В отличие от работ [19–23] эмиттер был помещен в “черную камеру”, все стенки которой охлаждали жидким азотом. Поэтому на эмиттер поступали только молекулы, вылетавшие по прямой из отверстия кнудсеновской ячейки на центральную часть эмиттера. Остальные, в том числе рассеянные, молекулы попадали на стенки камеры и “замораживались”. Остаточное давление в приборе было ~$10^{-6}$ Па.

Методика модуляции напряжения у поверхности эмиттера была применена, как в [20–22], с регулированием времени запирания ионов, со временем установления сигнала задержки не более $10^{-5}$ с. Были приняты специальные меры для предотвращению “отравления” эмиттера продуктами разложения исследуемых молекул [1]: использовали минимальные потоки исследуемых молекул на поверхность, была предусмотрена возможность подачи на поверхность эмиттера потока кислорода (~$5 \times 10^{13}$ моль/см$^2$с), осуществляли контроль путем сравнения сложных исследуемых молекул с результатами, полученными при адсорбции молекул с существенно меньшими числом атомов углерода, например, результаты адсорбции имипрамина и триметиламина с получением ионов радикала $CH_2{=}N^+(CH_3)_2$ [22].

## РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Экспериментально определены кинетические характеристики термодесорбции радикалов

$C_9\ H_7N^+CH_3$ с отношением массы к заряду $m/z$ 144 а. е. м. и гетерогенной реакции диссоциации молекул морфина при адсорбции молекул морфина на поверхности $W_xO_y$. Исследование морфина в качестве объекта исследований нестационарными процессами органических соединений связано с тем, что поверхностная ионизация молекул морфина была хорошо изучена в стационарных условиях [4–8]. Определена энергия активации сублимации [1], а также энергия активации термодесорбции в атмосфере воздуха [24]. Как известно, молекулы азотистых оснований в соответствии с установленными закономерностями поверхностной ионизации органических соединений [1] адсорбируются с помощью неподеленной пары электронов атома азота, образуя координационную связь с поверхностью. Оттягивание неподеленной пары электронов азота к эмиттеру приводит к образованию на атоме азота частичного положительного заряда Последнее вызывает ослабление β-связей (С–Н и С–С) относительного атома азота. Разрыв этих связей приводит к образованию на поверхности эмиттера радикалов $(M–H)_{адс}$ и $(M–R)_{адс}$, которые имеют невысокое значение потенциала ионизации (<6.5 эВ) [1] и легко отдают электрон эмиттеру. В результате образующиеся частицы десорбируются в виде валентно насыщенных устойчивых ионов с 4-х валентным положительно заряженным атомом азота. Плотность тока таких ионов, например, при адсорбции третичных алкиламинов и их производных на окисленном вольфраме, составляет до ~5 А/Торр · см$^2$. Поэтому выбранное в качестве объекта исследования вещество должно ионизироваться с высокой эффективностью с образованием ионов продуктов диссоциации исходных молекул. Опыты показали, что, действительно, главными по интенсивности являются линии ионов $(M - R)^+_\beta$, [1].

В масс-спектре морфина из-за наличия в молекуле второго гетероатома азота, в отличие от работы [25], где была исследована молекулы имипрамина, лидокаина и других лекарственных препаратов на поверхности окисленных металлов, кроме главной линии ионов $(M - R_1)^+_\beta$, соответствующей $m/z$ 144 а. е. м., присутствовала интенсивная (до ~30% от интенсивности иона с $m/z$ 144 а. е. м.) линия иона $(M - R_1)^+_\beta$ с $m/z$ 146 а. е. м. и ионов $(M - R_2)^+_\beta$ с $m/z$ 268 а. е. м. Кроме того, в масс-спектрах всех веществ присутствуют линии ионов $(M - H)^+_\beta$ с интенсивностью в несколько % от интенсивности линии $(M - R_1)^+_\beta$. Структурная формула иона, сигнал от которого соответствует с $m/z$ 144 а. е. м., приведена в работе [4].

Масс-спектры, полученные при ионизации молекул морфина на поверхности окисленного вольфрама, и температурные зависимости тока ионов радикалов $C_9H_7N^+CH_3$ с $m/z$ 144 а. е. м. приведены на рис. 1 и 2 [4–8]. Из диссоциативной поверхностной ионизации молекул морфина

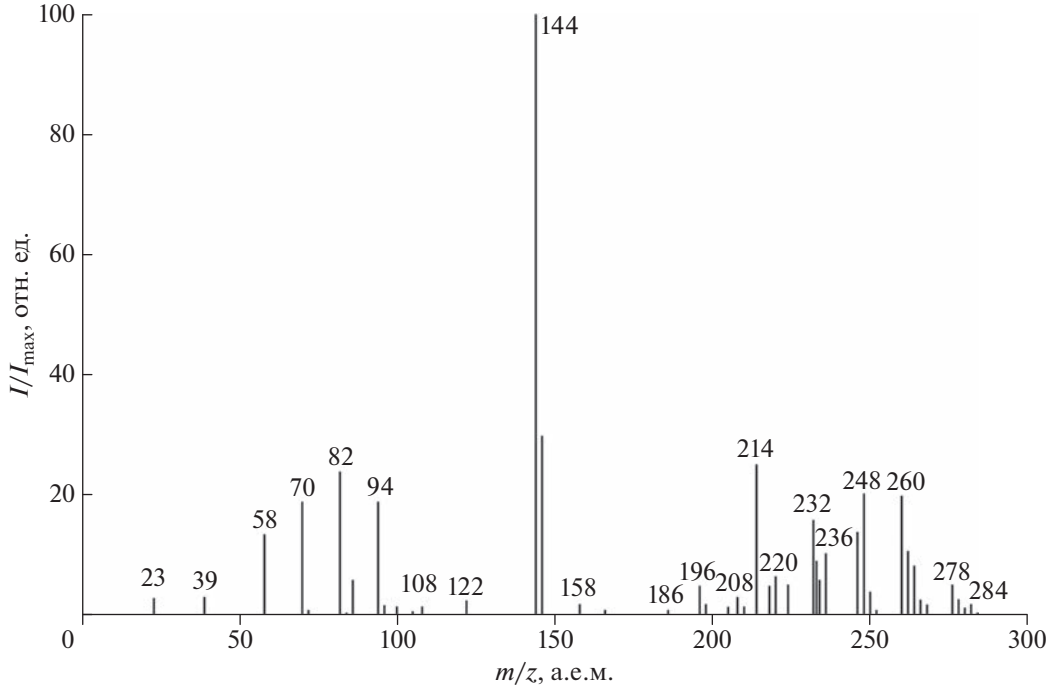


**Рис. 1.** Масс-спектр поверхностной ионизации морфина на окисленном вольфраме ($T_э$ = 1000 K) [6].

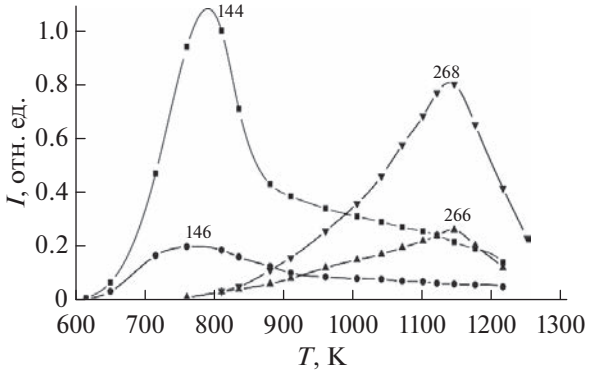


**Рис. 2.** Температурные зависимости тока ионов $C_9H_7N^+CH_3$ при адсорбции молекулы морфина [4]. Цифрами указаны значения $m/z$; для наглядности интенсивность тока ионов с $m/z$ 268 а. е. м. увеличена в 10 раз.

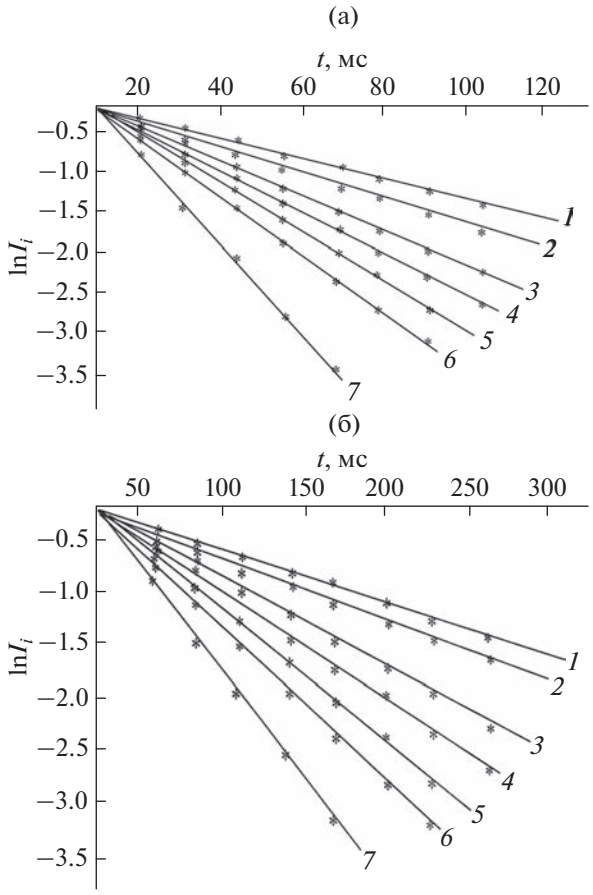


**Рис. 3.** Зависимости $\ln I_i(T) = f(t)$ при адсорбции молекул морфина, изученной методом модуляции напряжения (а) и методом модуляции потока (б).

видно, что в основном десорбируются продукты гетерогенной реакции диссоциации, так как они имеют относительно низкий потенциал ионизации $V$. Ионизируются эти радикалы на поверхности окисленного W с коэффициентом ионизации β, близким к единице [1, 19–22]. Поэтому для этого радикала $K_i^+ \gg K_i^0 + K_i^{d*}$, и методом модуляции напряжения будет получен резкий пик ионного тока при увеличении поверхностной концентрации $n_i$ ионизирующихся частиц. По полученным масс-спектрам видно, что молекулы морфина диссоциируются на поверхности окисленного вольфрама. После этого нами были проведены эксперименты по определению кинетических характеристик термодесорбции диссоциативной поверхностной ионизации молекул морфина методами модуляции напряжения и модуляции потока в единых условиях эксперимента.

Зависимости $\ln \Delta I_i = f(t)$ для различных температур эмиттера приведены на рис. 3. Из этих зависимостей были определены $K_i(t)$ и значения коэффициента поверхностной ионизации радикалов $C_9H_7N^+CH_3$ с $m/z$ 144 а. е. м. $\beta^* = \Delta I_i/I_i$. Видно, что времена жизни ионов радикалов $C_9H_7N^+CH_3$ с $m/z = 144$ а. е. м., полученные методом модуляции потока, больше, чем полученные методом модуляции напряжения в 3–4 раза. Были построены зависимости Аррениуса $\lg[K_i(T)\beta^*(T)] = \lg K_i^+(T) = f\left(\frac{1}{T}\right)$, которые приведены на рис. 4 и 5. По этим зависимостям были определены $E_i^+$ и $C$. Из сравнения с работами [20–23] полученные методом модуляции потока результаты мы отнесли к характеристикам гетерогенной реакции диссоциации молекул морфина и определили энергию активации гетерогенной реакции диссоциации $E^d$ и энтропийный множитель $G^*$. Полученные результаты можно представить в следующем виде:

$$K_{144}^+ = \frac{1}{\tau_{ММН}} = 10^{(12.4 \mp 1.0)} \times$$
$$\times \exp\left[-\frac{1.60\ \text{эВ}}{kT}\right],\quad \lg C = 12.4,$$
$$K_{144}^0 = 10^{(13.2 \pm 1.0)} \times$$
$$\times \exp\left[-\frac{1.91\ \text{эВ}}{kT}\right],\quad \lg D = 13.2,$$
$$K^d = \frac{1}{\tau^d} = 10^{(10.8 \mp 1.0)} \times$$
$$\times \exp\left[-\frac{1.35\ \text{эВ}}{kT}\right],\quad \lg G = 10.8,\quad \beta = 0.72.$$

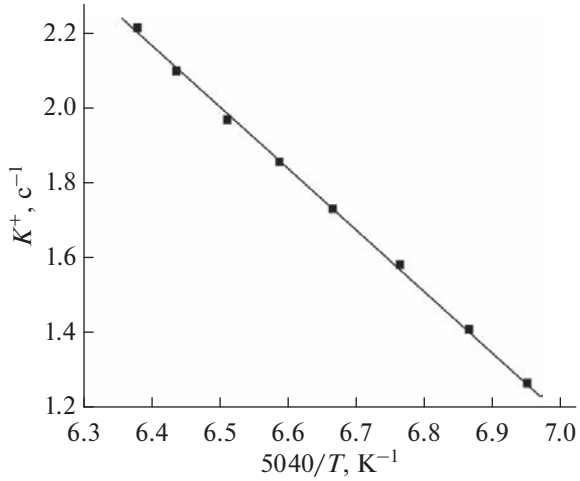


**Рис. 4.** Зависимость $\lg[K(T)\beta(T)] = K^+ = f\left(\frac{5040}{T}\right)$ при ионизации молекул морфина для радикалов $C_9H_7N^+CH_3$ (с $m/z$ 144 а. е. м.), полученная в условиях метода модуляции напряжения.

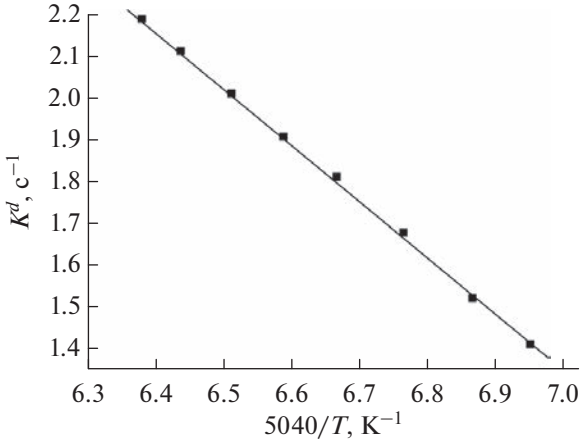


**Рис. 5.** Зависимость $\lg[K(T)\beta(T)] = K^d = f\left(\frac{5040}{T}\right)$ при ионизации молекул морфина для радикалов $C_9H_7N^+CH_3$ (с $m/z$ 144 а. е. м.), полученная в условиях метода модуляции потока.

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Изучение адсорбции и диссоциативной поверхностной ионизации многоатомных молекул азотистых оснований на поверхности окисленного вольфрама методами модуляции напряжения и модуляции потока позволяет определить не только константу скорости термодесорбции ионов $K^+$ и энергию активации десорбции в виде ионов продуктов диссоциации исходных молекулы $E^+$, но также позволяет определить характеристическое время гетерогенной реакции диссоциации $\tau^d$ (или $K^d$) и энергию активации гетерогенной реакции диссоциации исходных молекул на ионизирующихся частиц. В настоящей работе впервые определены константы скоростей $K^0$ и энергии активации термодесорбции $E^0$ нейтральных частиц для радикалов $C_9H_7N^+CH_3$ с $m/z = 144$ а. е. м. при адсорбции молекул морфина. Показано, что методом модуляции напряжения всегда определяется кинетические характеристики термодесорбции частиц в виде ионов или нейтральных частиц. Использование полученных данных вместе с определенными энергиями активации сублимации и термодесорбции органических соединений в атмосфере воздуха позволяют глубже понимать процессы адсорбции, десорбции и ионообразования на поверхности путем поверхностной ионизации в целом.

## БЛАГОДАРНОСТИ

Авторы выражают свою глубокую благодарность А. Раджабову за помощь в проведении исследований.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Rasulev U.Kh., Zandberg E.Ya.* // Progress Surf. Sci. 1988. V. 28. № 3. P. 181.
2. *Назаров Э.Г., Расулев У.Х.* Нестационарные процессы поверхностной ионизации. Ташкент: ФАН, 1991. 204 с.
3. *Зандберг Э.Я., Расулев У.Х., Шустров Б.Н.* // Докл. АН СССР. 1967. Т. 172. С. 885.
4. *Usmanov D.T., Khasanov U., Rasulev U.Kh.* // Chem. Nat. Compnd. 2003. V. 39. № 5. P. 489.
5. *Usmanov D.T., Khasanov U.* // J. Surf. Invest. X-ray, Synchrotron Neutron Tech. 2011. V. 5. Iss. 3. P. 503.
6. *Usmanov D.T., Khasanov U., Pantsirev A., J. Van Bocxlaer.* // J. Pharm. Biomed. Analysis. 2010. V. 53. Iss. 4. P. 1058.
7. *Usmanov D.T., Khasanov U., Akhunov Sh. Dj., Rotshteyn V.M., Kasimov B.Sh.* // Eur. J. Mass Spectrometry. 2020. V. 26. № 2. P. 153.
8. *Akhunov Sh.D., Kasimov B.Sh., Ashurov Kh.B., Usmanov D.T.* // J. Analyt. Chem. 2021. V. 76. P. 1499.
9. *Wheeler D.M.S., Kinstle T.H., Rinehart K.L.* // J. Am. Chem. Soc. 1967. V. 89. № 17. P. 4494.
10. *Raith K., Neubert R., Poeaknapo C., Boettcher C., Zenk M., Schmidt J.* // J. Am. Soc. Mass Spectr. 2003. V. 14. Iss. 11. P. 1262.
11. *Zitrin S., Yinon J.* // Analyt. Lett. 1977. V. 10. Iss. 3. P. 235.
12. *Zhang X., Chen M., Cao G. et al.* // J. Anal. Meth. Chem. 2013. V. 2. P. 151934.
13. *Phillips W.H. Jr., Ota K., Wade N.A.* // J. Anal. Toxicol. 1989. V. 13. P. 268.
14. *Pervukhin V.V., Sheven D.G.* // J. Anal. Chem. 2016. V. 71. № 9. P. 878.
15. *Schwerner T., Rossler T., Ahrens B. et al.* // Forensic Chem. 2017. V. 4. P. 9.

16. *Al-Salman H.N.K.* // Eur. J. Sci. Res. 2017. V. 147. № 4. P. 403.
17. *Sanchez P.L., Pereboom-de Fauw D.P.K.H., Mulder P.P.J., Spanjer M., de Stoppelaar J., Mol H.G.J., de Nijs M.* // Food Chem. 2018. V. 242. P. 443.
18. *Kong L., Walz A.J.* // Forensic Toxicol. 2020. V. 38. P. 352.
19. *Зандберг Э.Я., Ионов Н.И., Расулев У.Х., Халиков Ш.М.* // ЖТФ. 1978. Т. 48. № 1. С. 133.
20. *Зандберг Э.Я., Расулев У. Х., Назаров Э.Г.* // ЖТФ. 1980. Т. 50. № 8. С. 1752.
21. *Назаров Э.Г., Расулев У.Х., Рахманов Г.Т.* // Письма в ЖТФ. 1987. Т. 13. № 6. С. 354.
22. *Рахманов Г.Т., Саидумаров И.М., Худоева Х.К.* // Поверхность Рентген., синхротр. и нейтрон. исслед. 2009. № 8. С. 103.
23. *Зандберг Э.Я., Расулев У.Х., Назаров Э.Г.* // ЖТФ. 1981. Т. 51. № 1. С. 123.
24. *Хасанов У., Исхакова С.С., Раджабов А.Ш., Рахманов Г.Т.* // Uzbek J. Phys. 2016. V. 18. № 1. P. 45.
25. *Fujii T., Kurihara J., Aromoto H., Mitsusuka Y.* // J. Anal. Chem. 1994. V. 66. P. 1884.

# Determination of the Kinetic Characteristics of Thermal Desorption and Heterogeneous Reaction of Dissociation of Morphine Molecules on the Surface of Oxidized Tungsten

**G. T. Rakhmanov[1], *, B. E. Umirzakov[2], D. T. Usmanov[3], ****

[1]*National University of Uzbekistan, Tashkent, 100174 Uzbekistan*
[2]*Tashkent State Technical University, Tashkent, 100095 Uzbekistan*
[3]*Institute of Ion-Plasma and Laser Technologies, Uzbekistan Academy of Sciences, Tashkent, 100125 Uzbekistan*
**e-mail: rakhmanov.gt@mail.ru*
***e-mail: usmanov@iplt.uz*

Under the same experimental conditions the processes of adsorption, heterogenous reaction of dissociation on the surface and thermodesorption of $C_{17}H_{19}NO_3$ morphine molecules with $m/z$ 285 Da on the surface of oxidized tungsten was studied by the non-stationary such as voltage modulation and flux modulation methods. The experiments were carried out on a high-vacuum mass-spectrometer, in which a "black chamber" was used, all walls of which are cooled with liquid nitrogen. The kinetic characteristics of the processes of thermal desorption and the heterogeneous reaction of dissociation of molecules on the surface such as the rate constant of thermal desorption in the ionic and neutral states $K^+$ and $K^0$, the corresponding activation energies of thermal desorption $E^+$ and $E^0$, the pre-exponential factors $C$ and $D$, as well as the rate constant of the heterogeneous dissociation reaction $K^d$ and the activation energy of the heterogeneous reaction dissociations on the surface, exponential factors in the equation of continuity of the surface concentration for $C_9H_7N^+CH_3$ radicals with $m/z$ 144 during the adsorption of morphine molecules on the surface of oxidized tungsten were determined.

**Keywords:** nonstationary surface ionization, flux modulation method, voltage modulation method, morphine, adsorption, radicals, rate constants and activation energies of thermal desorption.

УДК 533.9:539.3-034.14

# ВЛИЯНИЕ МОДИФИЦИРОВАНИЯ ПОВЕРХНОСТИ МЕТАЛЛИЧЕСКОЙ МАТРИЦЫ НА МЕХАНИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА СЛОИСТЫХ КОМПОЗИТОВ СИЛУМИН/УГЛЕПЛАСТИК

**© 2023 г. А. А. Клопотов[a], *, Ю. Ф. Иванов[b], А. М. Устинов[a], А. Д. Тересов[b], Ю. А. Абзаев[a], В. А. Литвинова[a], ****

[a] *Томский государственный архитектурно-строительный университет, Томск, 634003 Россия*

[b] *Институт сильноточной электроники СО РАН, Томск, 634055 Россия*

**e-mail: klopotovaa@tsuab.ru*

***e-mail: victorisain@mail.ru*

Поступила в редакцию 19.07.2022 г.
После доработки 22.10.2022 г.
Принята к публикации 22.10.2022 г.

В работе представлены результаты исследования влияния облучения импульсным электронным пучком поверхности силумина доэвтектического состава на механические свойства материала. В качестве материала исследования использован силумин марки AK5M2 (Al–(4.0–6.0)Si–1.3Fe–0.5Mn–0.5Ni–0.2Ti–2.3Cu–0.8Mg–1.5Zn). Для проведения одноосной деформации растяжением были изготовлены двухсторонние пропорциональные образцы с головками. Также приведены результаты исследования эволюции полей деформаций слоистых композитов силумин/углепластик на одноосное растяжение на базе облученного силумина. Углепластик выполнен из наполнителя – углеродной однонаправленной ткани FibARM Tape-230 – и связующего – двухкомпонентного эпоксидного состава FibARM Resin 530. Методами растровой электронной микроскопии исследована поверхность излома образца. Построены зависимости максимальных и минимальных значений величины деформации в локализаторах на поверхности образца от усредненных деформаций по рабочей области образца. Определено увеличение (относительно силумина в исходном состоянии) прочностных и пластических свойств как образцов облученного силумина, так и композита силумин/углепластик. Выявлен пилообразный характер деформационной кривой одноосного растяжения композитного материала силумин/углепластик с предварительно облученной поверхностью пластины силумина.

**Ключевые слова:** облученная поверхность, деформация, электронный пучок, композит силумин/углепластик, доэвтектический силумин.

**DOI:** 10.31857/S1028096023050084, **EDN:** KUECVS

## ВВЕДЕНИЕ

Слоистые композитные материалы относят к так называемым материалам с межфазными образованиями (interfacial materials) [1]. Схематически макроструктуру таких материалов можно представить в виде “сэндвича”, состоящего из слоев (структурных элементов), разделенных между собой прослойками, свойства которых значительно отличаются от свойств слоев. Механические свойства слоистых композитных материалов в значительной степени определяются процессами локализации деформации на границах раздела макроструктурных элементов [2].

К классу материалов с межфазными образованиями принадлежат слоистые композитные материалы и наноматериалы. В нанокристаллических материалах размер зерна в значительной степени способствует ограничению работоспособности традиционных дислокационных механизмов деформации [3]. В результате возрастает вклад зерно-граничных процессов, которые приводят к деформационным преобразованиям на более высоком, мезоструктурном, уровне. Это проявляется в механизме относительных смещений структурных элементов [4]. Характер относительного смещения структурных элементов в материалах с межфазными образованиями в значительной степени определяется физико-механическими характеристиками (состоянием) активных зон на границе раздела между материалами [5]. Поэтому воздействуя на состояния активных границ раздела сред в материалах можно управлять механизмами релаксации локальных напряжений.

Высвобождение накопленной упругой энергии в слоистых композиционных материалах сопровождается процессами локализации деформаций на границах раздела структурных элементов. Важно отметить, что процесс диссипации энергии в материалах с межфазными образованиями носит пространственно-согласованный характер [6].

В литературе большое внимание уделено исследованиям повышения механических характеристик материала путем наклейки на поверхность элемента конструкции пленки углепластика [7–12]. Это позволяет в несколько раз повысить усталостную долговечность такого класса слоистых композитных материалов. В то же время, модифицируя определенным способом поверхность сплавов перед наклейкой углепластика, можно дополнительно повысить механические характеристики изделий.

Высокоэнергетичный импульсный электронный пучок является одним из перспективных инструментов для модификации поверхностного слоя металлов и сплавов. В работах [13, 14] показано, что облучение силумина импульсным электронным пучком сопровождается формированием в приповерхностном слое в результате сверхскоростного нагрева и охлаждения столбчатого рельефа, образованного кристаллитами размером менее 1 мкм. В результате созданный высокоэнергетичным облучением приповерхностный слой можно рассматривать как самостоятельную функциональную подсистему, оказывающую значительное влияние на масштабные уровни локализации пластического течения материала [15].

Целью данной работы являлось экспериментальное изучение влияния облучения импульсным электронным пучком поверхности образцов силумина в слоистом композите силумин/углепластик на механические свойства композитного материала.

## МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДИКИ ПРОВЕДЕНИЯ ЭКСПЕРИМЕНТОВ

В качестве материала исследования использован силумин доэвтектического состава марки AK5M2 (Al–(4.0–6.0)Si–1.3Fe–0.5Mn–0.5Ni–0.2Ti–2.3Cu–0.8Mg–1.5Zn, содержание элементов указано в вес. %). Для проведения одноосной деформации растяжением были изготовлены образцы в форме двухсторонних пропорциональных лопаток с рабочей областью размером 17 × 9.6 × 3.8 мм. Часть приготовленных лопаток облучали с двух сторон импульсным электронным пучком на установке “СОЛО” (ИСЭ СО РАН) [16] в следующих условиях: энергия ускоренных электронов 18 кэВ; длительность импульса пучка электронов 150 мкс; количество импульсов 3; частота следования импульсов 0.3 $с^{-1}$; плотность энергии пучка электронов 15 Дж/$см^2$.

Часть облученных и необлученных лопаток была использована для изготовления композитных слоистых образцов силумин/углепластик. Для этого к поверхности необлученных и облученных электронным пучком образцов приклеивали углеродную однонаправленную ткань FibARM Tape-200/30. В качестве связующего применяли двухкомпонентный эпоксидный состав FibARM Resin 530+. Этот клей выполнен на основе тиксотропной смеси эпоксидных смол и алифатического отвердителя. Физико-механические характеристики клея приведены в [17]. Клей имеет прочность на сдвиг 13 МПа. Склеивание проводили при температуре 23 ± 2°C и атмосферном давлении. Время полного набора прочности 5 суток.

На рис. 1б на вставке приведено схематически расположение слоев композита силумин/углепластик с предварительно облученной поверхностью силумина, с приклеенным углепластиком. На вставке рис. 1а представлено изображение, полученное методами растровой электронной микроскопии (прибор SEM-515 Philips) при исследовании поверхности излома образца, разрушенного в результате испытаний на растяжение, модифицированного облучением приповерхностного слоя силумина. Геометрические параметры слоев композита силумин/углепластик приведены в табл. 1.

Испытание образцов на растяжение осуществляли на испытательной машине INSTRON 3386 при скорости растяжения 0.3 мм в минуту. Схема проведения эксперимента представлена на рис. 1. Захваты испытательной машины обеспечивали надежное фиксирование и центрирование образцов. Распределение полей смещений на поверхности образцов в процессе одноосной деформации растяжением получено при помощи цифровой оптической системы Vic-3D на основе метода корреляции цифровых стереоскопических изображений [18, 19]. Перед испытаниями на поверхность образцов была нанесена спекл-картина, необходимая для регистрации смещений точек поверхности в процессе деформации [17, 20]. Измерения эволюции деформационных полей на поверхности исследуемых образцов осуществляли при помощи программы VicSnap на основе полученной синхронной записи изображений с двух камер (рис. 1). В результате были определены относительные продольные деформации ($\varepsilon_{YY}$ – по оси $Y$) [17, 18, 20].

## РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

На рис. 2 приведены деформационные кривые при одноосном растяжении в координатах $\sigma$ (нормальные напряжения вдоль оси растяжения)

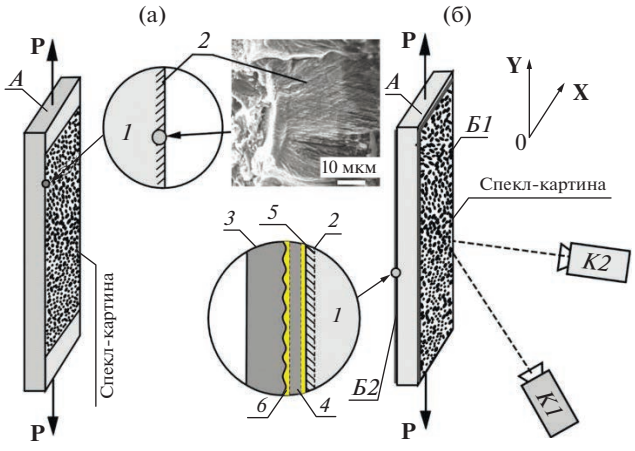


**Рис. 1.** Схема регистрации изображений модифицированной при помощи облучения импульсным электронным пучком поверхности образца (а) и поверхности образца с наклеенной углепластиковой пластиной (б) при деформации растяжением. На вкладках представлены схематически поперечные сечения с приповерхностных областей образцов и микрофотография облученного приповерхностного слоя сплава: *А* – пластина силумина; *Б1* и *Б2* – накладки из углепластика; *К1* и *К2* – цифровые камеры; *Р* – прикладываемая нагрузка. *1* – основной сплав; *2* – приповерхностный слой, облученный электронным пучком; *3* – углепластиковая пластина; *4* – слой эпоксидного клея; *5* – приграничный слой эпоксидного клея, взаимодействующего с поверхностью силумина; *6* – приграничный слой эпоксидного клея, взаимодействующего с поверхностью углепластика.

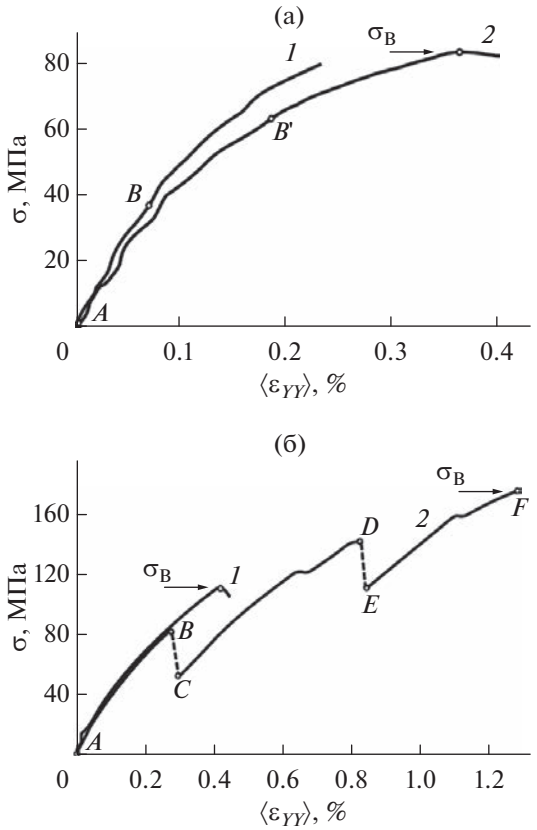


**Рис. 2.** Деформационные кривые одноосного растяжения силумина (а) и слоистых композитных материалов силумин/углепластик (б). Цифрами обозначены образцы с необлученной поверхностью (*1*) и образцы, облученные импульсным пучком электронов с плотностью энергии 15 Дж/см$^2$ (*2*).

от $\langle\varepsilon_{YY}\rangle$ силумина марки АК5М2 до облучения, после облучения импульсным электронным пучком и усиленных углепластиком (слоистых композитных материалов силумин/углепластик). Здесь $\varepsilon_{YY}$ – усредненная деформация по всему рабочему полю образца (рис. 1).

Анализ зависимости $\sigma-\langle\varepsilon_{YY}\rangle$ для необлученного силумина показывает, что разрушение образца произошло до достижения предела прочности $\sigma_B$. Разрушение облученного силуминового образца произошло после достижения предела прочности $\sigma_B$ (рис. 2а, кривая *2*). Кроме того, воздействие импульсным высокоэнергическим электронным пучком на поверхность силумина сопровождается увеличением пластичности материала на 70% относительно необлученного сплава (рис. 2а).

Как показано в [21, 22], облучение импульсным пучком электронов поверхности силумина

**Таблица 1.** Геометрические параметры слоев композита силумин/углепластик

| № слоя | Материалы композиционного образца | Толщина слоев |
|---|---|---|
| 1 | Основной металл | 2.7 мм |
| 2 | Облученный импульсным электронным пучком приповерхностный слой силумина | 27 ± 2 мкм |
| 3 | Приграничный слой эпоксидного клея, взаимодействующего с поверхностью силумина | 10 ± 4 мкм |
| 4 | Эпоксидный клей | 0.3–0.6 мм |
| 5 | Приграничный слой эпоксидного клея, взаимодействующего с поверхностью углепластика | 10–20 мкм |
| 6 | Углепластик | 0.6–0.8 мм |

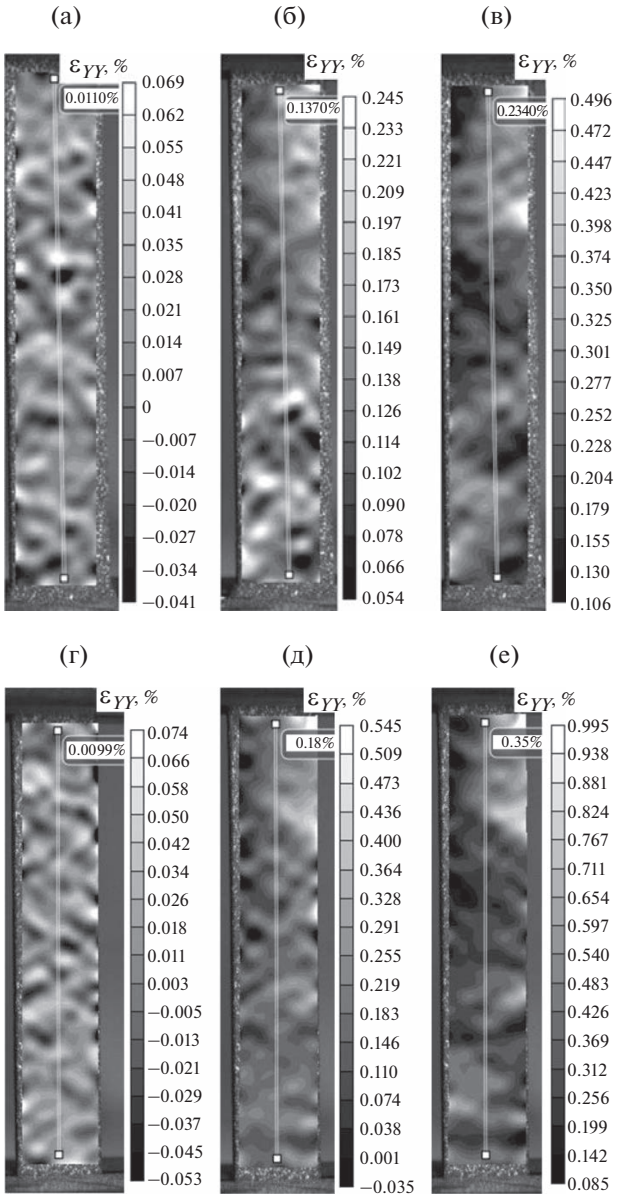


**Рис. 3.** Картины распределения относительных продольных деформаций $\varepsilon_{YY}$ на поверхности исследуемых образцов необлученного силумина (а–в), облученного электронным пучком с плотностью энергии 15 Дж/см$^2$ (г–е) при номинальных значениях деформации $\varepsilon_{YY}$ (указаны цифрами) 0.0110 (а); 0.1370 (б); 0.2340 (в); 0.0099 (г); 0.1800 (д); 0.35% (е) при одноосном растяжении.

приводит к изменениям структурно-фазового состояния приповерхностного слоя. В результате высокоскоростного плавления поверхностного слоя образцов силумина, инициированного воздействием импульсного пучка электронов, и последующей высокоскоростной кристаллизации поверхностный слой приобретает структуру ячеистого типа с размерами ячеек от 200 до 600 нм. Вдоль границ ячеек располагаются протяженные прослойки второй фазы, обогащенные преимущественно атомами кремния. В зависимости от параметров электронного пучка толщина модифицированного слоя может достигать 100 мкм и более.

Полученные деформационные кривые слоистого композитного материала силумин/углепластик показывают более высокие механические характеристики, чем исходный контрольный образец и облученный образец (рис. 2). Видно, что усиление необлученного образца силумина наклейкой углепластиковых пластин почти в два раза повышает прочностные характеристики исходного материала и на ~20% повышает предел прочности композитного материала относительно силумина, облученного импульсным электронным пучком.

При исследовании механических свойств слоистого композитного материала силумин/углепластик с предварительно облученной поверхностью пластины силумина, был установлен пилообразный характер деформационной кривой в координатах $\sigma$ от $\langle\varepsilon_{YY}\rangle$ (рис. 2б, кривая *2*). На начальном этапе участок деформационной кривой (участок *AB* на кривой *2*) практически совпадает с деформационной кривой слоистого композитного материала силумин/углепластик с необлученной поверхностью силумина (рис. 2б, кривая *1*). Затем в точке *B* на кривой *2* происходит скачкообразный срыв напряжения до точки *C*. Далее весь процесс деформирования повторяется до точки *D* (участок *CD* на кривой *2*). Затем следует скачкообразный срыв напряжения до точки *E* с последующим продолжением роста деформационной кривой вплоть до точки разрушения *F*.

Характер изменений на приведенных деформационных кривых на рис. 2 находит отражение на эволюции распределений деформационных полей на исследуемых образцах (рис. 3, 4).

На приведенных деформационных картинах на поверхности исследуемых образцов на различных стадиях можно наблюдать пространственно локализованное распределение деформационных полей. На этих деформационных картинах приведены локальные области, которые ограничены изолиниями, внутри которых величина деформации имеет одинаковое значение (рис. 3–5). На начальном этапе на деформационных картинах рабочих поверхностей всех исследуемых образцов можно наблюдать три типа областей: области растяжения; области сжатия и недеформируемые области (рис. 3–5). Следует отметить, что с ростом внешнего приложенного напряжения происходят специфические изменения в распределении и в конфигурации этих локализованных областей на поверхности образцов.

При одноосной деформации растяжением контрольных образцов силумина на поверхности

образуются локальные очаги деформации разного знака: растяжения и сжатия (рис. 3). При малых напряжениях на поверхности образца можно наблюдать хаотическое распределение локальных областей деформации разного знака. С ростом приложенной внешней нагрузки на стадии, предшествующей разрушению, локальные области начинают сливаться. Одновременно с этим образуется локальный очаг деформации на боковой грани образца с высоким значением величины деформации (рис. 3в), который при дальнейшем увеличении нагрузки приводит к разрушению контрольного образца силумина.

На основе анализа наблюдаемых на поверхности силумина локальных очагов деформации с максимальными значениями деформации $\varepsilon_{YY}^{\max}$ и минимальными значениями деформации $\varepsilon_{YY}^{\min}$ построены зависимости в координатах от $\langle\varepsilon_{YY}\rangle$ (рис. 6а). Здесь $\langle\varepsilon_{YY}\rangle$ характеризует усредненную деформацию по всему рабочему полю образца при одноосном растяжении. В исходном (необлученном) образце силумина зависимость $\varepsilon_{YY}^{\max}$ от $\langle\varepsilon_{YY}\rangle$ имеет экспоненциальный характер и достигает значений порядка 0.56%. При этом значении деформации в локальном очаге происходит разрушение образца. Значение деформации $\varepsilon_{YY}^{\max}$ в локальной области в два раза выше величины деформации $\left\langle\varepsilon_{YY}^{\max}\right\rangle$, усредненной по всему рабочему полю, при которой происходит разрушение образца. На начальном этапе одноосной деформации растяжения на поверхности необлученного образца присутствуют области сжатия в продольном направлении (рис. 3). При достижении усредненной деформации $\langle\varepsilon_{YY}\rangle$ значений порядка 0.07% эти области сжатия исчезают (рис. 6а, кривая *2*).

Образование таких локальных очагов деформации на поверхности силумина и эволюция деформационных полей при механическом воздействии связана с особенностями структурного состояния силумина. А именно, в исходном состоянии микроструктура силумина представлена зернами твердого раствора на основе алюминия, зернами эвтектики Al–Si, включениями кремния и интерметаллидов игольчатой формы [21, 22].

Облучение поверхности силумина электронным пучком приводит к структурно-фазовым превращениям, что отразилось на деформационной кривой (рис. 2а, кривая *2*) и деформационных картинах на поверхности образцов (рис. 3г–3е). На приведенных деформационных картинах облученных образцов в локальных областях наблюдается значительное увеличение деформации в них, а также увеличение их размеров по мере увеличения внешней механической нагрузки (рис. 3г–3е). На основе анализа распределений деформационных полей в зависимости от приложенной механической нагрузки были получены зависимости $\varepsilon_{YY}^{\max}$ и $\varepsilon_{YY}^{\min}$ от $\langle\varepsilon_{YY}\rangle$ в облученных образцах (рис. 6б). Видно, что зависимость $\varepsilon_{YY}^{\max}(\langle\varepsilon_{YY}\rangle)$ близка к линейной (кривая *1*). Другой особенностью зависимости является высокая величина деформации в локальных очагах деформации при разрушении образца, которая достигает значений порядка 1%, что почти в три раза выше, чем усредненная по всему рабочему полю деформация.

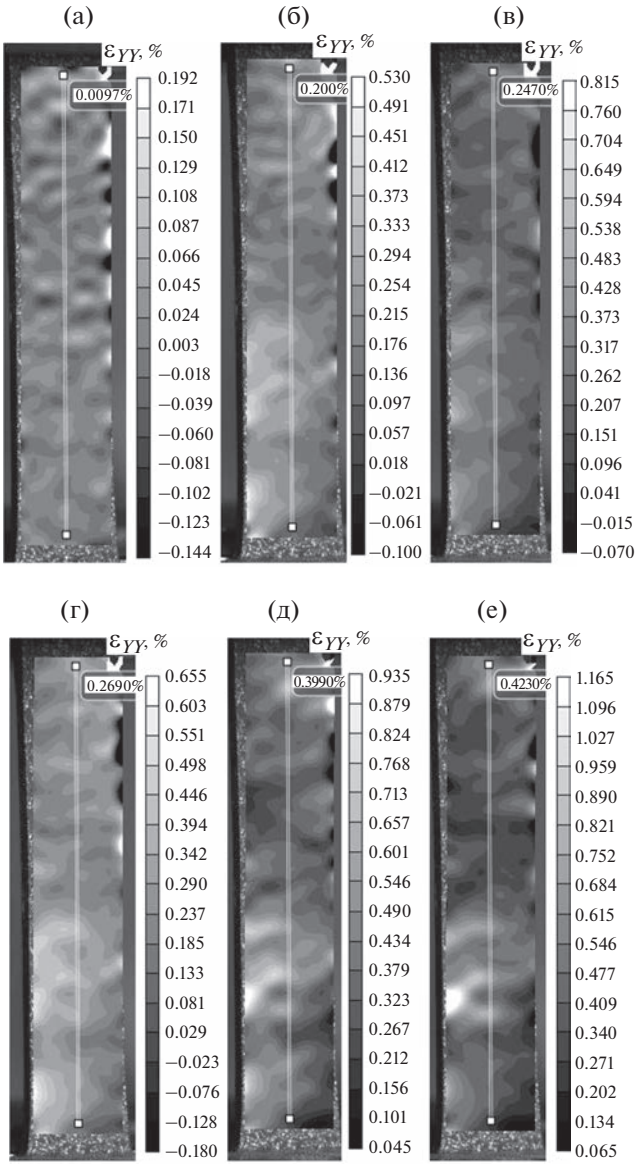


**Рис. 4.** Картины распределения относительных продольных деформаций $\varepsilon_{YY}$ на поверхности исследуемых образцов, усиленных углепластиковой наклейкой, при одноосном растяжении при номинальных значениях деформации $\varepsilon_{YY}$ (указаны цифрами) 0.0097 (а); 0.200 (б); 0.2470 (в); 0.2690 (г); 0.3990 (д); 0.4230% (е).

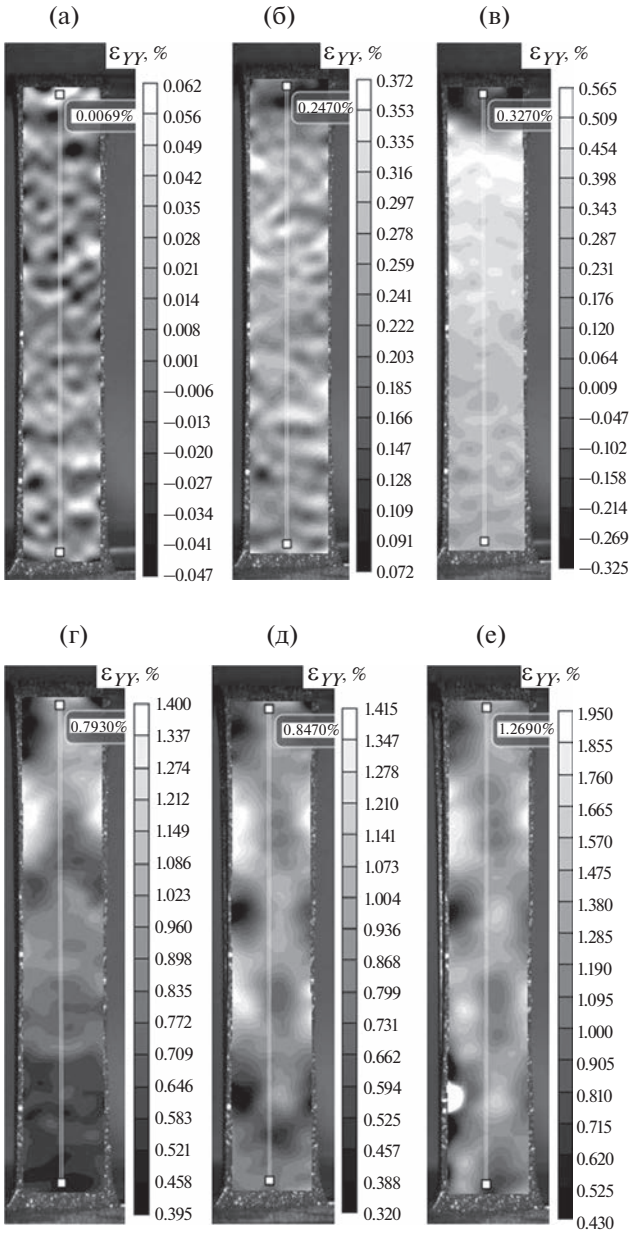


**Рис. 5.** Картины распределения относительных продольных деформаций $\varepsilon_{YY}$ на поверхности углепластика, наклеенного на облученную электронным пучком силуминовую пластину, в зависимости от величины деформации при номинальных значениях деформации $\varepsilon_{YY}$ (указаны цифрами) 0.0069 (а); 0.2470 (б); 0.3270 (в); 0.7930 (г); 0.8470 (д); 1.2690% (е).

На облученной поверхности образца при одноосном продольном растяжении можно наблюдать также локальные области сжатия (рис. 3г, 3д), что отразилось на зависимости $\varepsilon_{YY}^{\min}$ от $\langle\varepsilon_{YY}\rangle$ (рис. 6б). Эти области сжатия при величине деформации 0.2% в облученном образце исчезают с поверхности при более высоких значениях, чем в необлученном образце. Следует отметить, что на зависимости $\varepsilon_{YY}^{\max}$ ($\langle\varepsilon_{YY}\rangle$) в области значений $\langle\varepsilon_{YY}\rangle$ от 0 до 0.2% присутствуют осцилляции. Вероятно, такой характер изменения $\varepsilon_{YY}^{\min}$ обусловлен релаксационными процессами, происходящими в этих областях сжатия, и вызван метастабильными состояниями, возникшими из-за сверхбыстрой кристаллизации приповерхностного слоя в результате воздействия на поверхность высокоэнергетического электронного луча [21, 22].

Силумины в составе композитного материала силумин/углепластик обладают улучшенными прочностными свойствами (рис. 2б, кривая *1*). Композитный материал силумин/углепластик относится к материалам с межфазными образованиями, в котором существует блокирующая межслойная поверхность раздела. Наличие этой межслойной поверхности раздела вследствие процесса пластической релаксации в вязком блокирующем слое препятствует распространению трещины. На начальном этапе деформации композитного материала на поверхности углепластика вдоль боковой поверхности образца образуются локальные очаги деформации сжатия и растяжения, которые вызваны концентраторами напряжений на боковой поверхности металлической пластины. В этих локальных очагах деформация значительно выше, чем в локальных очагах деформации в центральной части образца (рис. 5а). Рост внешней нагрузки способствует дальнейшему образованию локальных очагов деформации на боковых гранях образца с увеличением в них значений деформации (рис. 4б–4д). При напряжениях, предшествующих разрушению образца, картина распределения локальных областей деформации существенно меняется: на фоне протяженной области на всей поверхности образца с положительным значением величины деформации образуется один локальный очаг деформации с высоким значением величины деформации в нем (рис. 4е). Появление такого локального очага деформации на боковой грани образца свидетельствует об образовании трещины в металлической пластине. Дальнейший рост этой трещины и привел к разрушению образца. Такая эволюция деформационных полей на поверхности приклеенного к металлической пластине углепластика отражает особенности строения композитного материала силумин/углепластик и особенности строения углепластика. Результат такого строения углепластика обеспечивает высокие пределы прочности и значения модуля упругости при растяжении. Выявленный локальный очаг деформации на боковой грани на поверхности углепластика свидетельствует об образовании в этом месте трещины на боковой грани пластины силумина. Развитие этой трещины эффективно тормозится приклеенным углепластиком в плоть до достижения критического значения, при котором происходит

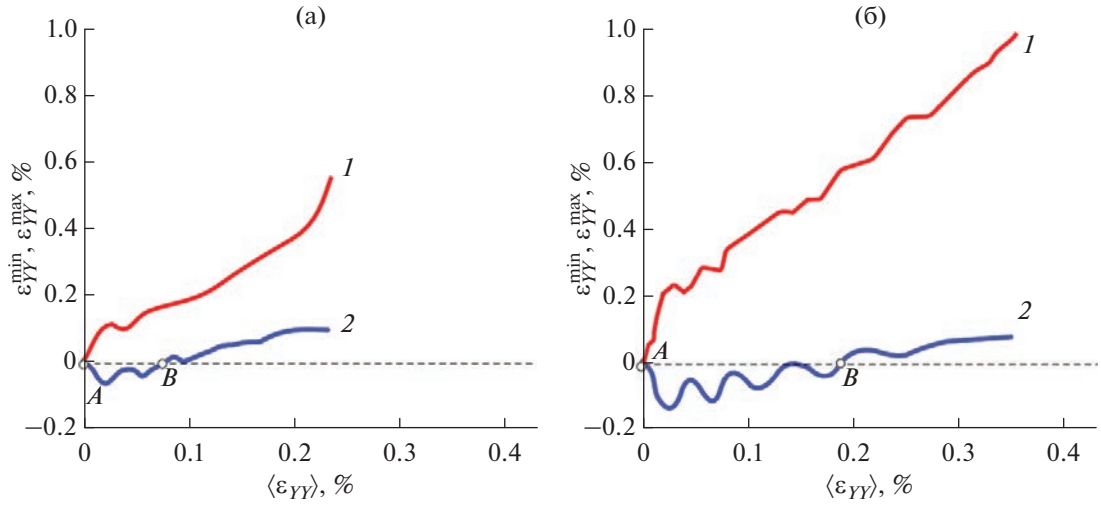


**Рис. 6.** Зависимости величины максимальной $\varepsilon_{YY}^{max}$ (*1*) и минимальной $\varepsilon_{YY}^{min}$ (*1*) продольных деформаций в локальных очагах деформации на поверхности образца от усредненной деформации по всему рабочему полю образца при одноосном растяжении $\langle\varepsilon_{YY}\rangle$: а – образец необлученного силумина; б – образец с поверхностью, облученной электронным пучком плотностью энергии 15 Дж/см$^2$; *AB* – участки на деформационных кривых с отрицательными значениями минимальных деформаций $\varepsilon_{YY}^{min}$ в локальных областях деформации.

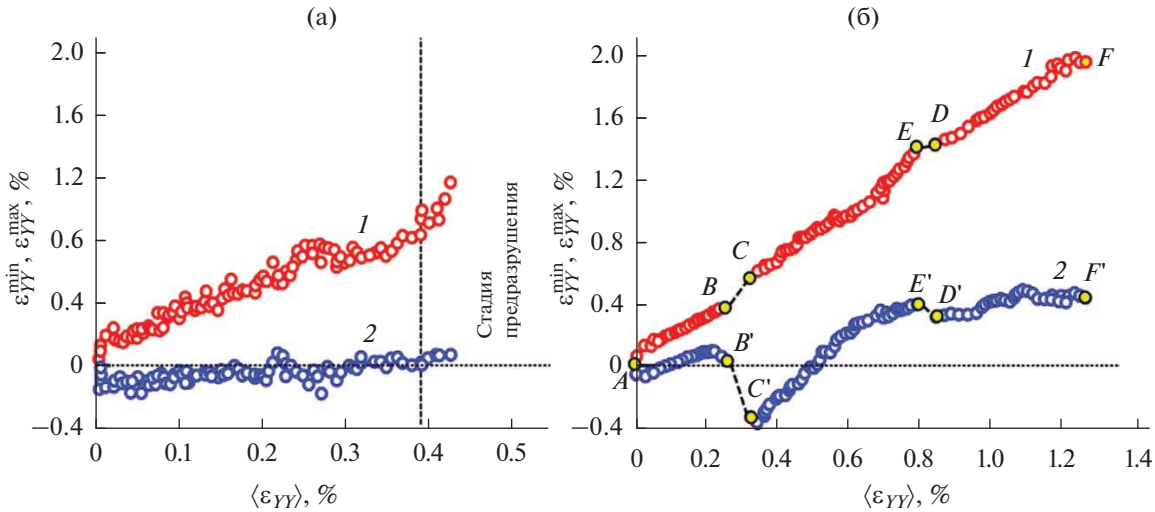


**Рис. 7.** Зависимости величины максимальной $\varepsilon_{YY}^{max}$ (*1*) и минимальной $\varepsilon_{YY}^{min}$ (*1*) продольных деформаций в локальных очагах деформации на поверхности слоистых композитных материалов силумин/углепластик от усредненной деформации по всему рабочему полю образца при одноосном растяжении $\langle\varepsilon_{YY}\rangle$: а – образец необлученного силумина; б – образец, облученный электронным пучком плотностью энергии 15 Дж/см$^2$; *BC* и *DE'* – участки разрывов на деформационной кривой *ABCDEF*.

разрушение клеевого слоя. Это подтверждено зависимостями $\varepsilon_{YY}^{max}$ и $\varepsilon_{YY}^{min}$ от $\langle\varepsilon_{YY}\rangle$ (рис. 7а). Особенностью этих зависимостей является сильный разброс величины деформации в локальных областях деформаций с $\varepsilon_{YY}^{max}$ и $\varepsilon_{YY}^{min}$. Это связано с релаксационными процессами, происходящими на поверхности плетеного углепластика, и отражает его структуру. Наличие локальных областей сжатия проявляется на зависимости $\varepsilon_{YY}^{min}$ от $\langle\varepsilon_{YY}\rangle$ на поверхности углепластика, и эти области существуют вплоть до стадии предразрушения композита (рис. 7а, кривая *2*).

Выявленный пилообразный характер деформационной кривой композитного материала силумин/углепластик (рис. 2б, кривая *2*) с предварительно облученной поверхностью пластины силумина проявляется в особенностях эволюции деформационных полей на поверхности углепластика в процессе одноосного растяжения (рис. 5)

в особенностях зависимостей $\varepsilon_{YY}^{max}$ и $\varepsilon_{YY}^{min}$ от $\langle\varepsilon_{YY}\rangle$ (рис. 7б).

Картина распределения деформационных полей на начальной стадии деформации усиленного образца силумина с предварительно облученной поверхностью подобна картине распределений деформационных полей на поверхности углепластика, приклеенного к необлученной пластине силумина (рис. 4а, 4б). Однако при достижении напряжений порядка 80 МПа происходит резкое понижение напряжения до 56 МПа (рис. 2б, участок *BC*, кривая *2*). Эта область на деформационной кривой $\sigma$–$\langle\varepsilon_{YY}\rangle$ коррелирует с разрывами на зависимостях $\varepsilon_{YY}^{max}$ и $\varepsilon_{YY}^{min}$ от $\langle\varepsilon_{YY}\rangle$ (рис. 7б) и отразилась следующим образом на картинах распределений деформационных полей в углепластике. Вблизи верхней головки образца образовалась обширная область сжатия со значительной величиной деформации в ней. Ниже этой области сжатия наблюдается градиентное распределение деформационного поля: в верхней части образца величина деформации равна ~0.55%, а в нижней части – близка к значениям ~0.25%. Вероятно, такое изменение деформационных полей на поверхности углепластика связано с появлением и распространением трещин на поверхности силумина в верней части образца. На деформационной кривой дальнейший рост напряжения подчиняется параболической зависимости (рис. 1б, участок *CD*, кривая *2*) и в росте величины деформации на зависимостях $\varepsilon_{YY}^{max}$ и $\varepsilon_{YY}^{min}$ от $\langle\varepsilon_{YY}\rangle$ (рис. 7б, участки *CE* и *C'E'*). На деформационных картинах, зафиксированных на этом участке деформационной кривой, исчезла область сжатия в верхней части образца, но в целом сохранялось градиентное распределение деформационного поля: в верхней части образца величина деформации равна ~1.3%, а в нижней части $\varepsilon_{YY}$ ~ 0.4% (рис. 5г).

Второе резкое понижение напряжения на величину порядка 30 МПа произошло при напряжении 140 МПа (рис. 2б, участок *DE*, кривая *2*), что отразилось на зависимостях $\varepsilon_{YY}^{max}$ и $\varepsilon_{YY}^{min}$ от $\langle\varepsilon_{YY}\rangle$ (рис. 7б, участки *DE* и *D'E'*) и проявилось на распределении деформационных полей на поверхности углепластика (рис 5г). Локальные области деформации выросли до размеров, соответствующих размерам ячеек плетения углеродной ткани и распределились на поверхности углепластика в шахматном порядке. Соседними областями являются области с высокой (до ~1.4%) и низкой (~0.4%) величиной деформации в них (рис. 5д).

Таким образом, интенсивное падение приложенного механического напряжения на деформационной кривой от 140 МПа до 110 МПа сопровождается самоорганизацией локальных очагов деформации в шахматном порядке на поверхности углепластика. Это явление обусловлено перераспределением нагрузки в слоистом композите после отслоения облученного силумина от углепластика.

На последней стадии, предшествующей разрушению образца, на деформационной кривой (рис. 7б, кривая *2*) наблюдается дальнейший рост величины деформации в локализованных очагах деформации (рис. 5е). Образование дополнительного очага деформации вблизи нижней головка образца на боковой грани образца способствовало разрушению. Этот дополнительный очаг деформации на поверхности углепластика соответствует образованию трещины и ее развитию в пластине силумина.

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Установлено, что облучение поверхности образцов силумина доэвтектического состава марки АК5М2 импульсным электронным пучком приводит к увеличению пластичности материала на 70% при малом увеличении прочностных свойств. Показано, что в слоистых композитах силумин/углепластик повышаются прочностные и пластические характеристики при использовании пластин силумина доэвтектического состава с облученной импульсным электронным пучком поверхностью.

Выявлен пилообразный характер деформационной кривой одноосного растяжения композитного материала силумин/углепластик с предварительно облученной поверхностью пластины силумина. Показано, при анализе эволюции деформаций на поверхности образцов, что первое падение приложенной внешней нагрузки на деформационной кривой обусловлено появлением трещин в облученном силумине, а как следствие перераспределением нагрузки в слоистом композите, а второе – отрывом углепластика от силумина по всей рабочей области образца, а как следствие, самоорганизацией локальных очагов деформации углепластика.

## БЛАГОДАРНОСТИ

Работа выполнена по Государственному заданию при финансовой поддержке Министерства образования и науки Российской Федерации (проект № FE MN-2020-0004). Облучение материала импульсным электронным пучком осуществлено при финансовой поддержке гранта РФФИ (проект № 19-48-700010).

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Ochiai S., Hojo M., Schulte K., Fiedler B.* // Composites A. 2001. V. 32. P. 749.
2. *Псахье С.Г., Шилько Е.В., Астафуров С.В.* // Письма в ЖТФ, 2004. Т. 30. Вып. 6. С. 45.

3. *Гусев А.И., Ремпель А.А.* Нанокристаллические материалы. М.: Физмат-Лит, 2004. 224 с.
4. *Колобов Ю.Р., Валиев Р.З., Грабовецкая Г.П. и др.* Зернограничная диффузия и свойства наноструктурных материалов. Новосибирск: Наука, 2001. 232 с.
5. *Шилько Е.В., Астафуров СВ., Псахье С.Г.* // Физическая мезомеханика. 2004. Т. 7. № спец. 2. С. 269.
6. *Кочаряп Г.Г., Спивак А.А.* Динамика деформирования блочных массивов горных пород. М.: ИКЦ Академкнига, 2003. 423 с.
7. *Копаница Н.О., Устинов А.М., Тришкина Л.И., Клопотов А.А., Абзаев Ю.А., Потекаев А.И.* // Деформация и разрушение. 2018. № 7. С. 38.
8. *Colombi P., Bassetti A., Nussbaumer A.* // Theor. Appl. Fracture Mechanics. 2003. V. 39. P. 61.
9. *Kim Y.J., LaBere J., Yoshitake I.* // Composites B. 2013. V. 51. P. 233. https://doi.org/10.1016/j.compositesb.2013.03.026
10. *Kałuża M., Hulimka J.* // Procedia Engineering. 2017. V. 172. P. 489.
11. *Heshmati M., Haghani R., Al-Emrani M.* // Composites B. 2017. V. 119. P. 153.
12. *Aljabar N.J., Zhao X.L., Mahaidi R.Al., Ghafoori E., Motavalli M., Powers N.* // Composite Structures. 2016. V. 152. P. 295.
13. *Ivanov Yu.F., Zaguliaev D.V., Glezer A.M., Gromov V.E., Abaturova A.A., Leonov A.A., Semin A.P., Sundeev R.V.* // Mater. Lett. 2020. V. 275. P. 128105.
14. *Иванов Ю.Ф., Ереско С.П., Клопотов А.А. и др.* Исследование влияния облучения электронным пучком на механические свойства при растяжении алюминия марки А7 и слоистого композита алюминий/углепластик. // Материалы XXIV Междунар. научно-практ. конф. Решетневские чтения. Красноярск. 2020. С. 414.
15. *Лотков А.И., Псахье С.Г., Князева А.Г., Ляхов Н.З.* Наноинженерия поверхности. Формирование неравновесных состояний в поверхностных слоях материалов методами электронно-ионно-плазменных технологий. Новосибирск: СОРАН. 2008. 276 с.
16. *Grigor'ev S.V., Devyatkov V.N., Koval N.N. et al.* // Techn. Phys. Lett. 2010. № 2. Iss. 36. P. 158.
17. *Копаница Н.О., Устинов А.М., Тришкина Л.И., Клопотов А.А., Абзаев Ю.А., Потекаев А.И.* // Деформация и разрушение. 2018. № 7. С. 38.
18. *Sutton M.A., Orteu J.J., Schreier H.* Image Correlation for Shape, Motion and Deformation Measurements. University of South Carolina, Columbia, SC, USA, 2009. 364 p.
19. *Третьякова Т.В., Третьяков М.П., Вильдеман В.Э. и др.* // Вестник ПГТУ. Механика. 2011. № 2. С. 92.
20. *Устинов А.М., Клопотов А.А., Потекаев А.И. и др.* // Известия АлтГУ. Физика. 2019. № 1. Вып. 105. С. 50.
21. *Коваль Н.Н., Иванов Ю.Ф.* Электронно-ионно-плазменная модификация поверхности цветных металлов и сплавов. Томск: НТЛ, 2016. 315 с.
22. *Zaguliaev D., Konovalov S., Ivanov Y., Gromov V.* // Appl. Surf. Scie. 2019. V. 498. P. 143767. https://www.doi.org/10.1016/j.apsusc.2019.143767.

# Influence of Modification of the Surface of a Metal Matrix on the Mechanical Properties of Layered Composites "Aluminum/Carbon Fiber" and Silumin/Carbon Fiber

**A. A. Klopotov[1, *], Yu. F. Ivanov[2], A. M. Ustinov[1], A. D. Teresov[2], Yu. A. Abzaev[1], V. A. Litvinova[1, **]**

[1]*Tomsk State University of Architecture and Building, Tomsk, 634003 Russia*

[2]*Institute of High Current Electronics SB RAS, Tomsk, 634055 Russia*

**e-mail: klopotovaa@tsuab.ru*

***e-mail: victorisain@mail.ru*

The paper presents the results of a study of the effect of irradiation of the surface of a hypoeutectic silumin with a pulsed electron beam on the mechanical properties of the material. Silumin grade AK5M2 (Al–(4.0–6.0)Si–1.3Fe–0.5Mn–0.5Ni–0.2Ti–2.3Cu–0.8Mg–1.5Zn) was used as the research material. To carry out uniaxial tensile deformation, two-sided proportional samples with heads were made. The results of studying the evolution of deformation fields of layered composites silumin/CFRP for uniaxial tension based on irradiated silumin are also presented. The carbon fiber is made of a filler – carbon unidirectional fabric FibARM Tape-230 – and a binder – a two-component epoxy compound FibARM Resin 530. The fracture surface of the samples was studied using scanning electron microscopy techniques. The dependences of the maximum and minimum values of strains in the localizers on the sample surface on the averaged strains over the working area of the sample are plotted. An increase (relative to silumin in the initial state) in the strength and plastic properties of both samples of irradiated silumin and of the silumin/CFRP composite was determined. A saw-tooth character of the deformation curve of uniaxial tension of the composite material silumin/carbon fiber with a pre-irradiated surface of the silumin plate is revealed.

**Keywords:** irradiated surface, deformation, electron beam, silumin/CFRP, hypoeutectic silumin.

УДК 537.622

# УПРАВЛЕНИЕ МАГНИТОСТАТИЧЕСКИМИ ПОЛЯМИ РАССЕЯНИЯ С ПОМОЩЬЮ ЭЛЕКТРИЧЕСКОГО ТОКА

**© 2023 г. О. А. Тихомиров***

*Институт физики твердого тела РАН, Черноголовка, 142432 Россия*

**e-mail: tikhomir@issp.ac.ru*

Поступила в редакцию 15.05.2022 г.
После доработки 27.07.2022 г.
Принята к публикации 27.07.2022 г.

Проанализирована возможность управления магнитными полями рассеяния вокруг проводящих слоистых структур, содержащих ферромагнетик. Показано, что в зависимости от геометрических параметров слоев могут реализовываться различные конфигурации магнитного поля, а также его величина под действием протекающего электрического тока. Расчет ведется на основе упрощенной модели, в которой реальное поле рассеяния аппроксимировано полем системы эффективных точечных магнитных зарядов на поверхности образца. В случае продольной намагниченности наведенное поле рассеяния частично экранирует приложенное внешнее поле, причем эта экранировка оказывается значительно более слабой при замене однородного магнитного поля воздействием электрического тока. В случае перпендикулярной намагниченности поля рассеяния сосредоточены вблизи доменных границ и краев образца, где они могут достигать значительной величины. Предложен механизм управления различными компонентами поля рассеяния на основе разворота доменных границ под действием магнитного поля протекающего тока. Численная оценка показывает, что ожидаемое отношение поля рассеяния к плотности тока хорошо совпадает с аналогичными экспериментальными величинами для эффективного поля, полученными в результате многочисленных транспортных измерений и приписываемыми обычно обменному взаимодействию между носителями тока в различных слоях (эффект близости). Предложенный альтернативный механизм возникновения поля необходимо учитывать при анализе спинового эффекта Холла и других задач спинтроники.

**Ключевые слова:** магнитные многослойные структуры, спинтроника, магнитостатические поля рассеяния, магнитное поле тока, доменные границы.

**DOI:** 10.31857/S1028096023050175, **EDN:** KQDEPT

## ВВЕДЕНИЕ

Вопрос управления магнитными и электрическими свойствами материалов при помощи протекающего тока уже долгое время остается в центре внимания исследователей, сформировав отдельную отрасль знания – спинтронику. При анализе многослойных систем наибольшее внимание уделяют явлениям переноса, спин-орбитальному взаимодействию между электронами различных слоев в силу их непосредственного контакта (эффекты близости), сводящимся к воздействию на электроны проводимости некоторого эффективного магнитного поля со стороны поверхности [1–6]. Определяющую роль в такого рода явлениях играют физические свойства на границе раздела между различными слоями, в частности, особенности зонной структуры, параметры ферми-поверхности и их скачок при пересечении границы раздела. В целом это направление является развитием традиционных методов физики твердого тела в применении к системам с дополнительной спиновой степенью свободы.

Другой путь воздействия на интегральные свойства материалов и кинетику носителей тока связан с вытекающим из уравнений Максвелла наличием в окрестности токонесущего проводника магнитостатических полей. Такой подход широко распространен при рассмотрении традиционных задач технического намагничивания в однородном внешнем поле. Частный случай неоднородного магнитного поля проводника с током не вызывал до сих пор широкого интереса, хотя были рассмотрены некоторые характерные задачи [7–11].

Для интерпретации магнитотранспортных измерений необходимо учитывать оба механизма взаимодействия тока с ферромагнетиком – контактный и полевой. В настоящее время оценка

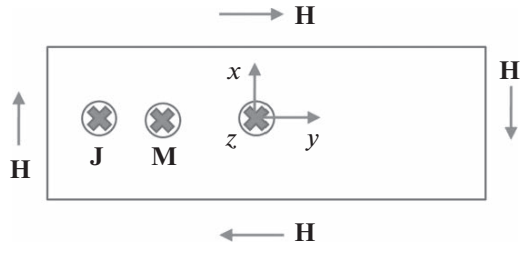


**Рис. 1.** Геометрия системы с осью легкого намагничивания в плоскости пленки. Ось $x$ направлена вдоль толщины провода, ось $y$ – вдоль ширины и ось $z$ – вдоль длины провода. Вектор намагниченности в исходном состоянии и ток направлены вдоль оси $z$, создаваемое током глобальное магнитное поле имеет компоненты $H_y$ и $H_x$.

глобального магнитного поля протекающего тока (часто называемого полем Эрстеда) становится обычным шагом при обсуждении результатов [12, 13]. Чаще всего величина эффективного поля, полученная из измеренных магнитосопротивления либо динамики доменных границ, оказывается существенно выше этого поля. Исходя из этого факта, поле тока не принято считать существенным фактором, и интерес исследователей сосредоточен главным образом на спин-орбитальном взаимодействии.

Однако сама по себе оценка величины поля Эрстеда является, по нашему мнению, недостаточной для исключения возможного вклада полевых взаимодействий. Как известно, ферромагнетик представляет собой принципиально нелинейную среду, свойства которой могут резко меняться под воздействием внешних факторов. Поэтому существенным является не только наличие внешнего поля тока, но и довольно сильных собственных магнитостатических полей рассеяния, возникающих как внутри ферромагнетика, так и вне его вследствие того, что намагниченность на его поверхности не является непрерывной. Следует отметить, что само пространственное распределение намагниченности в ферромагнитном слое может сильно меняться под действием относительно слабых внешних полей. Совокупное влияние полей рассеяния и поля протекающего тока хорошо объясняет, например, некоторые особенности поведения системы ферромагнетик-сверхпроводник [14]; в то же время при анализе экспериментальных данных спинтроники эту особенность ферромагнетиков совершенно не учитывают.

В настоящей работе проведена оценка магнитных полей рассеяния в типичных конфигурациях, используемых в экспериментах спинтроники, в зависимости от величины тока и геометрических параметров исследуемой системы.

## МОДЕЛЬ

Рассмотрим плоский ферромагнитный бесконечно длинный проводник (провод) толщиной $2t$, много меньшей его ширины $2w$ (т.е. можно считать объект пленкой конечной толщины и бесконечной длины). Геометрия задачи вместе с используемой системой координат показаны на рис. 1. Ось $x$ направлена вдоль толщины провода, ось $y$ – вдоль ширины и ось $z$ – вдоль длины провода. Протекание электрического тока вдоль оси $z$ создает внутри и вне проводника глобальное магнитное поле, направленное перпендикулярно оси $z$. Обе компоненты магнитного поля, $H_y$ и $H_x$, равны нулю в центре проводника, возрастают по приблизительно линейному закону к его границам [11, 15], достигают максимальной величины на соответствующей поверхности и ослабевают вне проводника по мере удаления от него. Точное выражение для обеих компонент поля в любой точке можно найти, например, в работе [15].

В отсутствие внешних воздействий вектор намагниченности провода расположен вдоль оси $z$ в силу, главным образом, анизотропии формы образца (рис. 1). Во второй части настоящей работы рассмотрен материал с перпендикулярной магнитной анизотропией, в этом случае намагниченность в начальном состоянии ориентирована вдоль оси $x$.

Под воздействием поля тока либо однородного внешнего магнитного поля намагниченность отклоняется от начального значения и создает на поверхности ферромагнетика фиктивные магнитные заряды, или полюса. Они являются источниками дополнительных полей рассеяния как внутри образца, так и вне его. Совместное действие поля рассеяния и собственного поля тока создает вокруг ферромагнитного слоя эффективное магнитное поле, вносящее добавочный вклад, например, в измеряемое магнитосопротивление близлежащего металлического слоя. Целью настоящей работы является оценка этого поля и определение его зависимости от тока и параметров проводника.

## РЕЗУЛЬТАТЫ

### *Легкая ось в плоскости*

Начнем рассмотрение с простейшего случая однородного внешнего магнитного поля $H_y = H_0$. Приложение к образцу такого поля вызовет определенное отклонение намагниченности $M_y$. Поле рассеяния $H_{dy}$, создаваемое выходом этой компоненты на соответствующую поверхность провода, можно записать в виде:

$$H_{dy} = -4\pi N_y M_y, \quad (1)$$

где $N_y$ – соответствующая компонента размагничивающего фактора, нормированного в интервале от 0 до 1. Общая магнитная энергия с учетом внешнего поля

$$W = 4\pi N_y M_y^2 - M_y H_0. \quad (2)$$

Минимизируя эту величину по отношению к $M_y$, получим равновесное значение нормированной поперечной намагниченности

$$m_y = M_y/M = H_0/(8\pi M N_y), \quad (3)$$

где $M$ – намагниченность насыщения. Выражение (3) описывает обычный процесс вращения вектора намагниченности, где поле анизотропии определено анизотропией формы образца. Подставляя (3) в (1), находим равновесную величину поля рассеяния

$$H_{dy} = -H_0/2. \quad (4)$$

Таким образом, поле размагничивания при равновесной конфигурации равно половине приложенного поля и направлено против него. Суммарное поле будет также равно половине приложенного, но сохранит его знак. В силу непрерывности тангенциальной компоненты поля на границе ферромагнетика оно будет одинаковым как внутри ферромагнетика, так и вне его.

При переходе от внешнего магнитного поля к глобальному полю тока нужно учитывать, что поле тока является сильно неоднородным. Неоднородным будет и пространственное распределение намагниченности, следовательно, приближение размагничивающего фактора окажется неприменимым. Поэтому полезно получить оценку поля рассеяния другим способом. Однородная поперечная намагниченность соответствует появлению на краях образца эффективных магнитных зарядов с линейной плотностью $\pm 2tM_y$ (рис. 2а). По аналогии с электростатикой неоднородное поле двух равномерно заряженных полос бесконечной протяженности в центре пространства между ними можно оценить как

$$H_{dy} = -4M_y t/w. \quad (5)$$

Поскольку размагничивающий фактор $N_y$ примерно пропорционален $t/w$, когда $t \ll w$ и $N_z = 0$, при однородной намагниченности это выражение с точностью до численного множителя эквивалентно (1).

Рассмотрим теперь отклонение намагниченности под действием поля тока. Это поле имеет две компоненты $H_x$ и $H_y$. Первая из них стимулирует выход вектора намагниченности из плоскости пленки. В силу условия $t \ll w$ нормальная компонента намагниченности приводит к возникновению сильных полей рассеяния, поскольку

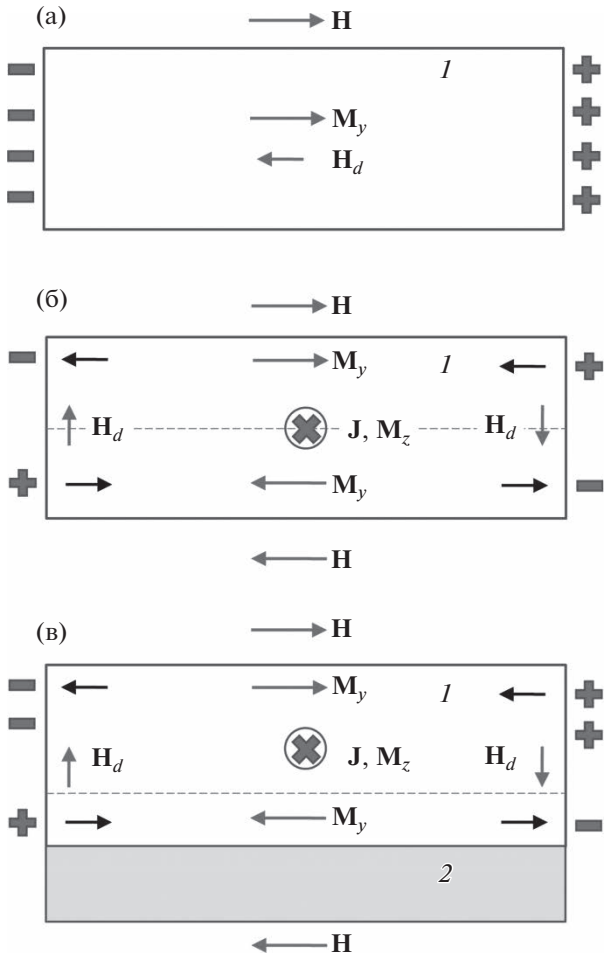


**Рис. 2.** Распределение магнитных зарядов и создаваемое ими поле рассеяния. (а) Однородное внешнее магнитное поле, (б) симметричное поле тока в одиночном проводнике, (в) поле тока в двуслойной системе. В последнем случае плоскость с нулевым значением поля $H_y$ (пунктиром) смещена из центра проводника *1* на некоторое расстояние *a*.

размагничивающий фактор в направлении $x$ близок к 1, и резкому росту энергии. Влияние этой компоненты намагниченности будет рассмотрено во второй части статьи; в данном разделе мы учитываем только поле $H_y$. Зависимость поля $H_y$ от координаты $x$ близка к линейной [11, 15], что приводит к характерной веерообразной структуре намагниченности: в центральной части она по-прежнему ориентирована вдоль длинной оси $z$, а ближе к поверхности поперечное отклонение возрастает [11]. С точки зрения магнитостатики такая структура может быть аппроксимирована четырьмя полосами магнитных зарядов (рис. 2б), каждая из которых несет эффективный магнитный заряд величиной приблизительно $0.3tM_y$ на единицу длины. В отличие от случая однородного поля, конфигурация зарядов под действием поля

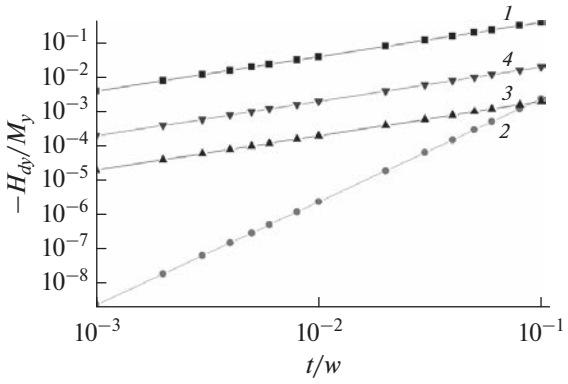


**Рис. 3.** Относительная величина поля рассеяния в зависимости от отношения толщины провода к его ширине. Внешнее однородное магнитное поле (уравнение (5), кривая *1*), ток вдоль ферромагнитной пленки (уравнение (6), кривая *2*), ток в двухслойной системе (уравнение (7)) при $a/t = 0.01$ (кривая *3*) и 0.1 (кривая *4*).

тока соответствует двум дипольным парам, поэтому поле от зарядов противоположного знака (рис. 2б, черные стрелки) вдали от них почти полностью компенсируется. Небольшой нескомпенсированный остаток поля пропорционален $(1 - \cos\alpha)$, где $\alpha$ – малый угол, образуемый направлением из нижнего левого угла в серединную точку верхней поверхности, $\mathrm{tg}\alpha = (2t/w)$. Учитывая малость угла, соответствующий вклад пропорционален $(t/w)^2$. Общая нескомпенсированная сумма поля от четырех зарядов, расположенных по углам схемы (рис. 2б) составляет

$$H_{dy} = -2.4M_y\left(t/w\right)^3. \qquad (6)$$

По сравнению с выражением (5), соответствующим однородному полю, поле рассеяния значительно меньше в случае поля тока, поскольку $t/w \ll 1$.

Представим теперь, что к ферромагнитной пленке *1* примыкает дополнительный проводящий слой *2*, подключенный к источнику тока параллельно первому (рис. 2в). Ток, протекающий по этой части образца, создаст в исходном слое *1* дополнительное магнитное поле одного знака. В результате распределение намагниченности в исходной пленке, изначально симметричное, получит дополнительный сдвиг в направлении, заданном добавочным полем. С магнитостатической точки зрения это равноценно появлению на одной из поверхностей пленки новой пары магнитных зарядов с линейной плотностью $\pm aM_y$, где $a$ – смещение узла магнитного поля, то есть изменение координаты $x$, при которой поле тока $H_y(x) = 0$ (горизонтальные пунктирные линии на рис. 2б, 2в). Добавка к магнитному полю рассеяния составит

$$H_{dy} = -2M_y a/w. \qquad (7)$$

Эта величина все еще мала по сравнению с однородным случаем (5), поскольку $a < t$, однако в зависимости от толщины дополнительного слоя выражение (6) может быть больше или меньше (7).

Подведем промежуточные итоги для случая пластины, намагниченной в плоскости. Под действием однородного внешнего поля поперечная намагниченность определяется выражением (3), поле рассеяния равно половине приложенного (уменьшает его вдвое). При замене однородного поля собственным полем Эрстеда электрического тока экранирование внешнего воздействия наведенными магнитными полюсами оказывается значительно слабее и зависит от толщины пленки $\sim(t/w)^3$. Введение дополнительного проводящего слоя частично восстанавливает экранирование, однако поле рассеяния остается относительно слабым по сравнению с выражением (5), приближаясь к нему лишь в предельном случае, когда практически весь ток течет по немагнитному слою ($a \approx t$). Зависимость поля рассеяния от приведенной толщины ферромагнитного слоя $t/w$ для этих типичных ситуаций показана на рис. 3. Во всех случаях поле рассеяния оказывается меньше приложенного поля.

### *Перпендикулярная магнитная анизотропия*

Теперь рассмотрим магнетик с перпендикулярной магнитной анизотропией, где вектор намагниченности в основном объеме направлен по нормали к поверхности (рис. 4). Размагничивающий фактор в этом направлении равен 1, что соответствует большой плотности поверхностных магнитных зарядов и потенциально высоким значениям поля рассеяния (до $4\pi M$). Однако вдали от краев однородно намагниченной пленки поле от зарядов разного знака двух близко расположенных поверхностей взаимно компенсируется и велико только внутри пленки. В этом случае его воздействие на кинетику электронов проводимости эффективно лишь внутри ферромагнетика, и для вклада в магнито-транспортные свойства соседнего проводника носители должны физически переходить из ферромагнетика (эффект близости). Вертикальная компонента поля размагничивания $H_{dx}$ принимает максимальные значения уже в отсутствие внешних воздействий и мало меняется при их появлении. Процессы вращения намагниченности могут вызвать лишь возникновение горизонтального поля рассеяния $H_{dy}$, аналогичного рассмотренному выше, с той разницей, что отклонение намагниченности определяется теперь перпендикулярной магнитной анизотропией вместо анизотропии формы.

Ситуация, однако, существенно меняется при наличии в ферромагнетике доменных границ

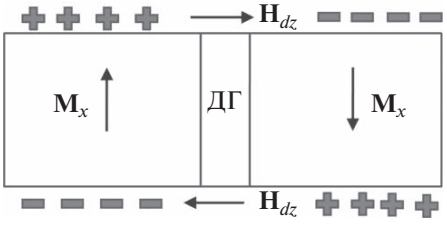


**Рис. 4.** Геометрия задачи и магнитостатические поля рассеяния в ферромагнетике с перпендикулярной магнитной анизотропией. Поле $H_{dx}$ сосредоточено в объеме доменов, поле $H_{dz}$ – в окрестности доменной границы (отмечена ДГ).

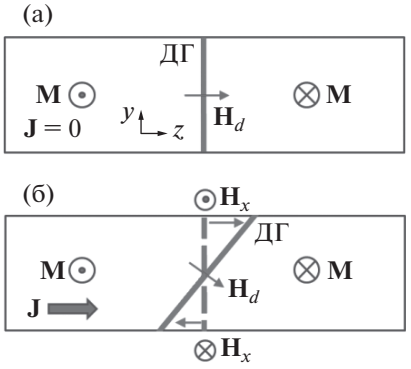


**Рис. 5.** Переориентация поля рассеяния в окрестности доменной границы (отмечена ДГ) под действием протекающего тока. Вид сверху: а – в отсутствие тока поле рассеяния направлено вдоль провода по оси $z$, б – под действием вертикальной компоненты поля тока стенка на краях провода смещается в противоположных направлениях, создавая пропорциональную току компоненту поля рассеяния $H_{dy}$.

(стенок). Смена знака магнитных зарядов в точке выхода стенки на поверхность приводит к возникновению чрезвычайно сильного магнитного поля рассеяния величиной в несколько кЭ [16, 17]. Если стенка ориентирована поперек провода, получим сильно неоднородное в пространстве поле $H_{dz}$, противоположно направленное на поверхностях образца (рис. 4). При перемещении стенки вдоль образца под действием внешнего поля или тока источник поля рассеяния будет перемещаться вместе с ней. Однако величина этого поля все еще определяется структурой стенки и окружающих доменов и слабо зависит от силы внешнего воздействия. Для эффективного управления полем рассеяния $H_d$ необходим механизм, позволяющий перестраивать распределение намагниченности в пространстве. Эту роль может выполнять изменение ориентации стенки под действием вертикальной компоненты поля тока $H_x$ (рис. 5). Указанная компонента имеет разный знак на противоположных боковых краях провода, поэтому воздействие на доменную границу происходит в противоположных направлениях. Результатом является искривление формы стенки, при слабом токе близкое к простому повороту на угол $\theta$, пропорциональный в первом приближении величине тока. Теория этого явления изложена, например, в работе [18]. Пропуская по проводнику ток определенной величины, можно в широких пределах изменять поле рассеяния $H_{dy}$ за счет поворота доменной границы:

$$H_{dy}(j) = H_d \sin\theta(j). \qquad (8)$$

Поле $H_{dz} \sim \cos\theta$ и в режиме слабого тока (при малых углах $\theta$) изменяется незначительно.

Проведем численную оценку эффективности рассмотренного механизма управления. Расчетная величина магнитостатического поля $H_d$, создаваемого эффективными зарядами в окрестности доменной границы, до определенной степени зависит от способа трактовки возникающей сингулярности; разумным приближением принято считать значение $H_d = 2M$ [19]. Используя табличную величину намагниченнности для кобальта, как типичного материала с перпендикулярной магнитной анизотропией, имеем $M = 1423$ Гс и $H_d = 2846$ Э. При угле наклона стенки $\theta = 20°$ получим $H_{dz} = 2674$ Э и $H_{dy} = 968$ Э. Согласно результатам работы [18], указанная величина угла может быть достигнута при плотности тока примерно $j = 0.34 j_c$, где критическая величина плотности тока, рассчитанная для типичных образцов, изученных в экспериментах [13, 20–24], составляет $j_c \sim 2.2 \times 10^{12}$ А/м$^2$. Разделив поле рассеяния вдоль оси $y$ на величину тока, получим коэффициент пропорциональности $H_{dy}/j = 588 \times 10^{-12}$ Э · А/м$^2$, являющийся характеристикой материала. Экспериментально измеренные значения этой величины для эффекта Холла колеблются в диапазоне $(100–800) \times 10^{-12}$ Э · А/м$^2$ [13, 20–23] при наиболее часто встречающейся величине 500–600 Э/$10^{12}$ А/м$^2$ [20, 24]. Таким образом, пропорциональное току магнитостатическое поле $H_{dy}$ хорошо совпадает с измеренной величиной эффективного поля, действующей на носители тока при магнитотранспортных измерениях, хотя природу этого поля трактуют в работах [13, 20–23] совершенно иначе. Это, в свою очередь, означает, что рассмотренный механизм перестройки магнитостатических полей под действием тока должен быть учтен, по меньшей мере, как один из возможных вкладов в измеряемый эффект. Примерное соотношение компонент поля в зависимости от плотности тока показано на рис. 6.

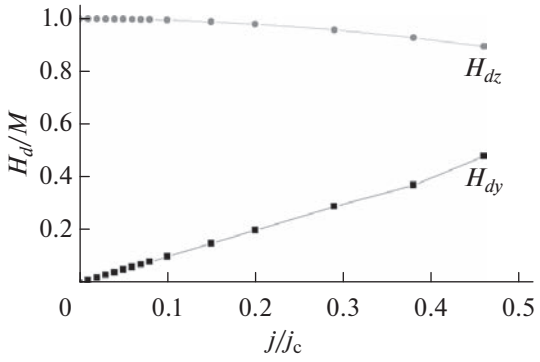


**Рис. 6.** Относительная величина двух компонент поля рассеяния в окрестности доменной границы в зависимости от плотности протекающего тока.

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В работе проанализировано изменение магнитных полей рассеяния вокруг проводящих слоистых структур, содержащих ферромагнетик, под влиянием протекающего электрического тока. Расчет проведен на основе упрощенной модели, в которой реальное поле рассеяния аппроксимировано полем системы эффективных точечных магнитных зарядов на поверхности образца. Показано, что в зависимости от геометрических параметров слоев могут реализовываться различные конфигурации магнитного поля, а его величина может изменяться в широких пределах.

Мы видим, что возможности управления магнитостатическими полями рассеяния при помощи электрического тока оказываются совершенно различными для плоскостной и перпендикулярной магнитной анизотропии.

В первом случае поле наведенных магнитных зарядов лишь частично компенсирует внешнее воздействие, достигая максимальной величины 1/2 величины однородного магнитного поля, практически не экранируя поле тока, протекающего по одиночной ферромагнитной пленке и проявляя промежуточную между этими ситуациями реакцию в многослойных образцах.

В случае перпендикулярной магнитной анизотропии поля рассеяния достигают максимальных величин даже в отсутствие внешнего воздействия; под действием же глобального поля тока происходит частичная переориентация этих полей в силу рассмотренного в настоящей работе механизма поворота доменной границы под влиянием вертикальной компоненты поля. Возникающая в этом случае поперечная компонента $H_{dy}$ линейно зависит от тока и может изменяться в широких пределах, рассчитанный коэффициент отношения поля к току близок к измеренному экспериментально значению. Указанные особенности реакции ферромагнетика на магнитное поле тока следует принимать во внимание при интерпретации экспериментальных данных по спиновому эффекту Холла, магнитосопротивлению и другим вопросам спинтроники.

## БЛАГОДАРНОСТИ

Работа выполнена в рамках государственного задания ИФТТ РАН.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Stiles M.D., Zangwill A.* // Phys. Rev. B. 2002. V. 66. P. 014407.
2. *Miron I.M., Garello K., Gaudin G., Zermatten P.-J., Costache M.V., Auffret S., Bandiera S., Rodmacq B., Schuhl A., Gambardella P.* // Nature. 2011. V. 476. P. 189.
3. *Haney P.M., Lee H.-W., Lee K.-J., Manchon A., Stiles M.D.* // Phys. Rev. B. 2013. V. 88. P. 214417.
4. *Martinez E., Emori S., Beach G.S.D.* // Appl. Phys. Lett. 2013. V. 103. P. 072406.
5. *Ryu J., Lee S., Lee K.-J., Park B.-G.* // Adv. Mater. 2020. V. 32. P. 1907148.
6. *Ado I.A., Tretiakov O.A., Titov M.* // Phys. Rev. B. 2017. V. 95. P. 094401.
7. *Williams H.J., Shockley W.* // Phys. Rev. 1949. V. 75. P. 178.
8. *Aleonard R., Brissonneau P., Neel L.* // J. Appl. Phys. 1963. V. 34. P. 1321.
9. *Lopez E., Aroca C., Sanchez P.* // J. Magn. Magn. Mater. 1983. V. 36. P. 175.
10. *Salhi E., Berger L.* // J. Appl. Phys. 1994. V. 76. P. 4787.
11. *Smith N., Doyle W., Markham D., LaTourette D.* // IEEE Trans. Magn. 1987. V. 23. P. 3248.
12. *Liu L., Lee O.J., Gudmundsen T.J., Ralph D.C., Buhrman R.A.* // Phys. Rev. Lett. 2012. V. 109. P. 096602.
13. *Lee H.-R., Lee K., Cho J., Choi Y.-H., You C.-Y., Jung M.-H., Bonell F., Shiota Y., Miwa S., Suzuki Y.* // Sci. Rep. 2014. V. 4. P. 6548.
14. *Tikhomirov O.A., Skryabina O.V., Uspenskaya L.S.* // J. Magn. Magn. Mater. 2021. V. 535. P. 168971.
15. *Berthe R., Birkner A., Hartmann U.* // Phys. Stat. Sol. A. 1987. V. 103. P. 557.
16. *Slonczewski J.C.* // J. Appl. Phys. 1973. V. 44. P. 1759.
17. *Hagedorn F.B.* // J. Appl. Phys. 1974. V. 45. P. 3129.
18. *Yoo S.-C., Moon K.-W., Choe S.-B.* // J. Magn. Magn. Mater. 2013. V. 343. P. 234.
19. *O'Dell T.H.* // Phys. Stat. Sol. A. 1978. V. 48. P. 59.
20. *Emori S., Bono D.C., Beach G.S.D.* // Appl. Phys. Lett. 2012. V. 101. P. 042405.

21. *Kawaguchi M., Shimamura K., Fukami S., Matsukura F., Ohno H., Moriyama T., Chiba D., Ono T.* // Appl. Phys. Express. 2013. V. 6. P. 113002.

22. *Woo S., Mann M., Tan A.J., Caretta L., Beach G.S.D.* // Appl. Phys. Lett. 2014. V. 105. P. 212404.

23. *Li J., Yu G., Liu Y., Shi Z., Liu Y., Navabi A., Aldosary M., Shao Q., Wang K.L., Lake R., Shi J.* // Phys. Rev. B. 2017. V. 95. P. 241305.

24. *Emori S., Bauer U., Ahn S.-M., Martinez E., Beach G.S.D.* // Nature Mater. 2013. V. 12. P. 611.

# Control of the Magnetostatic Stray Fields Using Electric Current

**O. A. Tikhomirov***

*Institute of Solid State Physics RAS, Chernogolovka, 142432 Russia*

**e-mail: tikhomir@issp.ac.ru*

Possibility to control magnetic stray fields around conductive layered ferromagnet-containing systems has been analyzed. It is shown that different patterns of magnetic stray field can be realized depending on layers parameters and current. Calculation is based on the simplified model where the real stray field is approximated with that of effective magnetic charges at the sample surface. In case of in-plane magnetization the induced stray field partially screens the external one. This screening is less effective when the applied magnetic field is replaced with electric current. In case of out-of-plane magnetization the stray field is concentrated near domain walls and near sample edges where it can be extremely strong. The mechanism to control different components of the stray field via domain wall rotation by current-induced magnetic field is proposed. Numerical estimation shows that expected ratio of stray field to current is close to experimental values obtained in numerous transport measurements and usually ascribed to proximity effects (exchange interaction between carriers in adjacent layers). The proposed alternative origin of effective field should be taken into account dealing with spin Hall effect and similar spintronics problems.

**Keywords:** magnetic multilayers, spintronics, magnetostatic stray field, current-induced magnetic field, domain walls.

УДК 539.216.2

# ОПТИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА И СТРУКТУРА ПЛЕНОК $In_2O_3$, ПОЛУЧЕННЫХ НА ПОДЛОЖКАХ $Al_2O_3$ (012) МЕТОДОМ dc-МАГНЕТРОННОГО НАПЫЛЕНИЯ

© 2023 г. А. А. Тихий[a, *], Ю. М. Николаенко[b], Е. А. Свиридова[b, c], И. В. Жихарев[b]

[a]Луганский государственный педагогический университет, Луганск, 91011 Россия

[b]Донецкий физико-технический институт им. А.А. Галкина, Донецк, 83114 Россия

[c]Донбасская национальная академия строительства и архитектуры, Макеевка, 286123 Россия

*e-mail: ea0000ffff@mail.ru

Поступила в редакцию 10.07.2022 г.
После доработки 19.10.2022 г.
Принята к публикации 19.10.2022 г.

Обобщены результаты исследований оптических свойств и структуры пленок $In_2O_3$ на подложках $Al_2O_3$ (012), полученных методом dc-магнетронного распыления. Исследованные пленки отличаются временем напыления, температурой подложки, а также наличием дополнительной термообработки на воздухе. По результатам рентгеноструктурных измерений данные пленки демонстрируют рефлекс, соответствующий плоскости (222) кубической модификации $In_2O_3$, точное положение и полуширина которого зависят от времени напыления. Оптические свойства полученных пленок объясняются неоднородной по толщине микроструктурой, которая формируется при распылении мишени с относительно невысокой механической прочностью. Так, показатель преломления пленок, осажденных на подложки комнатной температуры, возрастает в направлении от подложки к внешнему интерфейсу. При температуре подложки более 300°C, показатель преломления пленок однороден, за исключением шероховатого слоя на поверхности. Термообработка уменьшает количество дефектов кристаллической структуры пленок, и приводит к уплотнению материала пленок. В результате исчезает неоднородность показателя преломления и уменьшается наблюдаемая ширина запрещенной зоны для прямых переходов. Последнее является следствием изменения сдвига Бурштейна–Мосса в результате уменьшения концентрации дефектов решетки. Ширина запрещенной зоны для “непрямых” переходов (соответствующая истинному значению ширины запрещенной зоны) малочувствительна к отжигу.

**Ключевые слова:** оксид индия, пленки, сапфир, эллипсометрия, оптическое пропускание, рентгеноструктурный анализ, магнетронное напыление, отжиг, температура подложки, время напыления, запрещенная зона, оптические свойства.

**DOI:** 10.31857/S1028096023050163, **EDN:** KQQYGF

## ВВЕДЕНИЕ

Пленки $In_2O_3$ не только обладают высокой оптической прозрачностью и хорошей электропроводностью, но и чувствительность последней к различным газам может изменяться путем легирования [1–4]. Поэтому пленки на основе $In_2O_3$ перспективны в качестве газовых сенсоров. Шероховатая поверхность, которая естественным образом образуется в процессе роста данных пленок, способствует их высокой чувствительности. Этому также способствует поликристаллическая структура пленок и присутствие в них механических напряжений, увеличивающих коэффициенты диффузии [5].

Для получения поликристаллических пленок оксида индия обычно используются кварцевые или пассивированные кварцем стеклянные подложки. Однако, использование сапфировых подложек может быть оправдано их лучшей термической и химической стабильностью. При этом большинство работ посвящено эпитаксиальным пленкам на сапфировых подложках [6–10], в то время как для нанесения поликристаллических пленок они применяются редко.

Структура поверхности пленок во многом зависит от метода и режимов получения [11]. Поверхность пленок, полученных методом магнетронного напыления обладает большей шероховатостью, по сравнению с пленками полученными другими методами [12]. К тому же магнетронное напыление, является масштабируемым, обеспечивает хорошую производительность, воспроизводимость параметров пленок, и позволяет получать их при различных температурах подложек [13, 14].

Применение неразрушающих оптических методов исследования – эллипсометрии и оптического пропускания, позволяет бесконтактно исследовать свойства наноразмерных тонкопленочных покрытий. Поскольку влияние свойств материала на результаты эллипсометрических измерений снижается с ростом расстояния от него до поверхности, а для оптического пропускания такой зависимости нет, указанные методы дополняют друг друга.

В данной работе собраны результаты ранее проведенных нами исследований структуры и оптических свойств пленок $In_2O_3$ полученных на подложках $Al_2O_3$ (012) в различных режимах dc-магнетронного распыления [15–23].

## ЭКСПЕРИМЕНТ

Напыление проводилось в атмосфере аргон-кислород в течение 15–180 мин. при температурах подложки 20, 300 и 600°C. Рабочий ток составлял 50 мА, напряжение 300 В. После проведения измерений, полученные пленки также подвергались отжигу на воздухе в течение 1 ч. при температуре 600°C, а затем исследовались повторно.

Эллипсометрические измерения проводились с помощью многоуглового нуль-эллипсометра на длине волны гелий-неонового лазера (632.8 нм).

Интерпретация результатов эллипсометрических измерений проводилась в рамках описанной ниже трехслойной модели. Поиск параметров модели осуществлялся оптимизационным методом [24]. В качестве целевой функции нами использовалась функция:

$$G(d_1,d_2,d_3,n_3)=\sum_{i=1}^{M}\left(\frac{\left(\Psi_i^{(e)}-\Psi_i^{(c)}(d_1,d_2,d_3,n_3,\varphi_i)\right)^2}{(\Psi_i^{(e)})^2}+\right.$$
$$\left.+\frac{\left(\Delta_i^{(e)}-\Delta_i^{(c)}(d_1,d_2,d_3,n_3,\varphi_i)\right)^2}{(\Delta_i^{(e)})^2}\right).$$

Здесь индексами (e) и (c) обозначены экспериментальные и расчетные значения эллипсометрических углов $\Psi$ и $\Delta$, а $M$ – число измерений при различных углах падения зондирующего излучения $\varphi$. Минимизация целевой проводилась методом полного перебора в разумно выбранных диапазонах значений параметров модели. Анизотропия показателя преломления подложки не учитывалась благодаря специальному выбору ее ориентации при проведении измерений. Погрешность найденных значений показателя преломления составляет порядка 0.05, а толщины – 5%.

Измерения оптического пропускания выполнены на спектрофотометре Shimadzu UV-2450 в диапазоне 200–900 нм при спектральной ширине щели 5 нм.

Состав мишеней и полученных пленок контролировался с помощью рентгеновского дифрактометра ДРОН-3.

## РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

По данным рентгеноструктурного анализа исследованные пленки являются поликристаллическими и демонстрируют рефлекс, соответствующий плоскости (222) кубической модификации $In_2O_3$ (пространственная группа $Ia\bar{3}$) [16, 17].

Согласно результатам эллипсометрических измерений, при понижении температуры подложки не только возрастает толщина $d$ полученных пленок, но и увеличивается степень неоднородности материала [18–21]. Так, показатель преломления $n$ пленок, осажденных на подложки с температурой 20°C, линейно возрастает в направлении от подложки к шероховатому слою с 1.9 до 2 (табл. 1). Причиной этого может быть повышение температуры поверхности растущей пленки в процессе ее напыления. Температура подложки также оказывает влияние и на положение края фундаментального поглощения исследованных пленок [18–20] (рис. 1). Наблюдаемая ширина запрещенной зоны для прямых переходов $E_g^{\Gamma}$ уменьшается с ростом температуры.

Отжиг приводит к унификации свойств исследованных пленок. При этом устраняется неоднородность распределения показателя преломления по толщине. Наблюдаемая ширина запрещенной зоны для прямых переходов также уменьшается в результате отжига. Это хорошо объясняется моделью зонной структуры $In_2O_3$, представленной в [25], согласно которой $E_g^{\Gamma}$ существенно отличается от реальной благодаря особенностям симметрии решетки и сдвигу Бурштейна–Мосса. Последний существенно зависит от дефектов кристаллической структуры, количество которых в пленках, нанесенных на подложки с большей

**Таблица 1.** Параметры пленок $In_2O_2$ полученных при различных температурах подложки (время напыления – 1 час)

| Температура подложки | 20°C | 300°C | 600°C |
|---|---|---|---|
| До отжига | | | |
| Параметры пленки | $n$ = 1.9–2<br>$d$ = 550 нм | $n$ = 2<br>$d$ = 450 нм | $n$ = 2.1<br>$d$ = 440 нм |
| Параметры шероховатого слоя | $n$ = 2–1.8<br>$d$ = 80 нм | $n$ = 2–1.53<br>$d$ = 75 нм | $n$ = 2.1–1.65<br>$d$ = 20 нм |
| $E_g^{\Gamma}$, эВ | 4.07 | 3.78 | 3.72 |
| $E_g^{indir}$, эВ | 2.94 | 2.5 | 2.72 |
| После отжига | | | |
| Параметры пленки | $n$ = 1.95<br>$d$ = 405 нм | $n$ = 2<br>$d$ = 450 нм | $n$ = 2.05<br>$d$ = 440 нм |
| Параметры шероховатого слоя | $n$ = 1.87–1.67<br>$d$ = 21 нм | $n$ = 1.8–1.55<br>$d$ = 20 нм | $n$ = 2–1.2<br>$d$ = 30 нм |
| $E_g^{\Gamma}$, эВ | 3.81 | 3.76 | 3.71 |
| $E_g^{indir}$, эВ | 2.69 | 2.43 | 2.67 |

температурой, меньше. Отжиг на воздухе приводит к устранению кислородных вакансий, что снижает концентрацию носителей заряда, а, следовательно, и величину $E_g^{\Gamma}$ [26, 27]. Ширина запрещенной зоны для “непрямых” (запрещенных по симметрии) переходов $E_g^{indir}$ изменяется меньше, по причине электрон-фононных взаимодействий.

Для некоторых исследованных пленок, полученных при температуре подложки 600°C, наблюдалась зависимость строения от времени напыления [21–23]. Так, согласно данным рентгеноструктурных измерений, полуширина рефлекса соответствующего плоскости (222) материала пленки уменьшается при сокращении времени напыления, а его положение смещается с 30.3° до 30.5° (табл. 2). При этом положение рефлексов от материала подложки остается неизменным. Также положение рефлекса соответствующего плоскости (222) материала пленки сохраняется при повороте образца в плоскости его поверхности.

Оптическое пропускание таких пленок аномально уменьшается с уменьшением длины волны. Для описания их оптических свойств мы приманили трехслойную модель (рис. 2).

Первый слой этой модели описывает шероховатую поверхность пленки, как однородный слой с оптическими свойствами, рассчитанными на основе диэлектрической проницаемости кубической модификации $In_2O_3$ и коэффициента заполнения 0.5, в соответствии с уравнением Клаузиуса–Моссотти. Оптические свойства второго слоя соответствуют кубической модификации $In_2O_3$ согласно [28]. Третий слой, с высоким коэффициентом экстинкции, расположен между пленкой и подложкой. Спектр коэффициента экстинкции этого слоя описывается законом фундаментального поглощения в полупроводнике с $E_g^{\Gamma}$ = 1.39 эВ. По данным эллипсометрических измерений его показатель преломления близок к 3. Это согласуется с оценками показателя преломления для полупроводника с шириной запрещенной зоны 1.39 эВ, выполненными согласно [29].

Как видно из рис. 3, для пленок со временем напыления от 15 до 60 мин толщина поверхностного слоя убывает, а толщина среднего слоя растет с ростом времени напыления, при этом общая толщина двух первых слоев остается практически

**Таблица 2.** Зависимость размера кристаллитов, полуширины и положения рефлекса соответствующего плоскости [222] материала пленки от времени ее напыления

| Время напыления, мин | Полуширина, град | Размер кристаллитов, нм | 2θ, град |
|---|---|---|---|
| 35 | 0.52 | 18 | 30.49 |
| 60 | 0.54 | 17 | 30.63 |
| 120 | 0.77 | 12 | 30.31 |
| 180 | 0.8 | 11 | 30.27 |

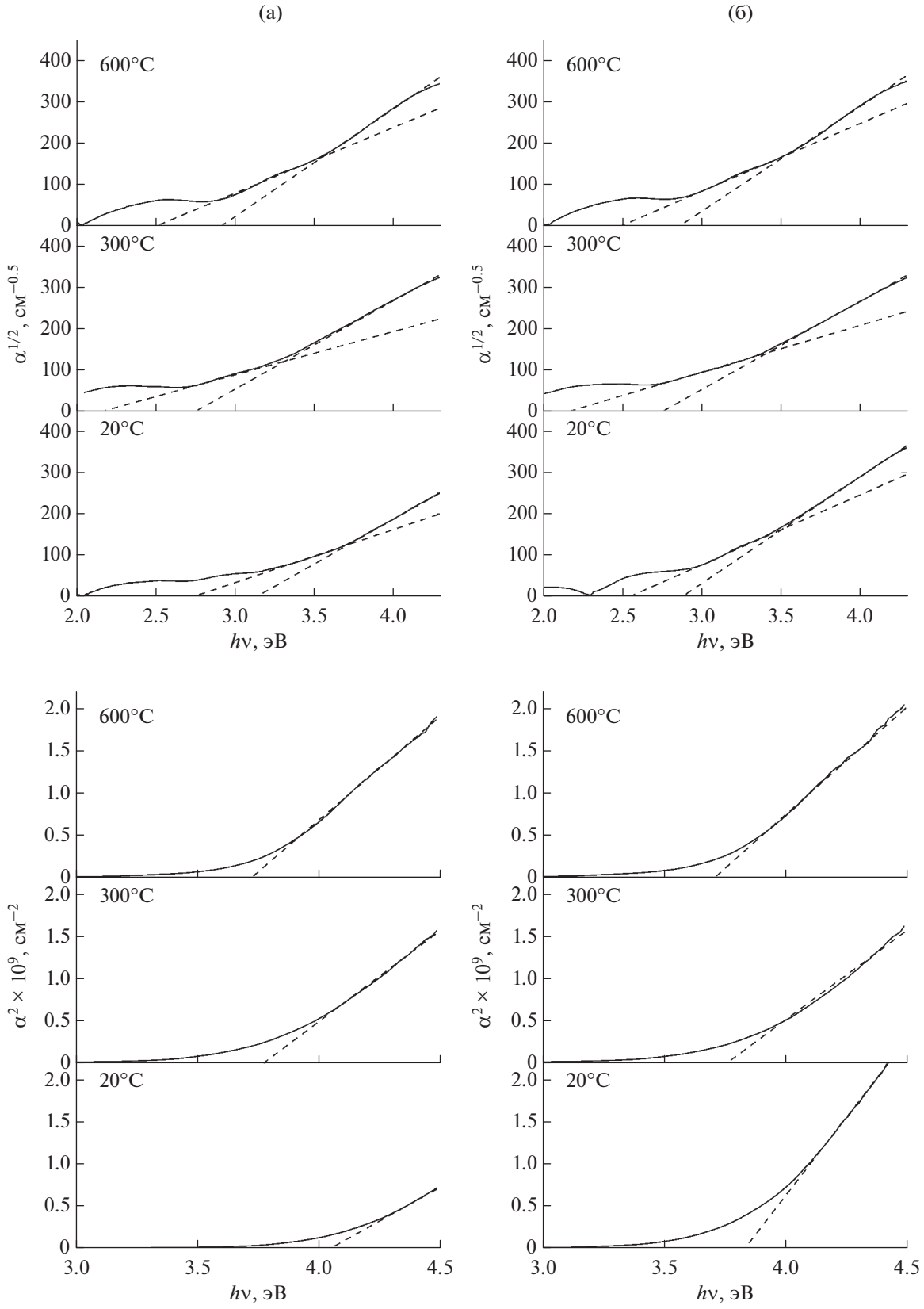


**Рис. 1.** Зависимости коэффициента поглощения $\alpha^2$ и $\alpha^{1/2}$ от энергии фотонов для неотожженных (а) и отожженных (а) пленок, напыленных при указанных на графиках температурах подложки.

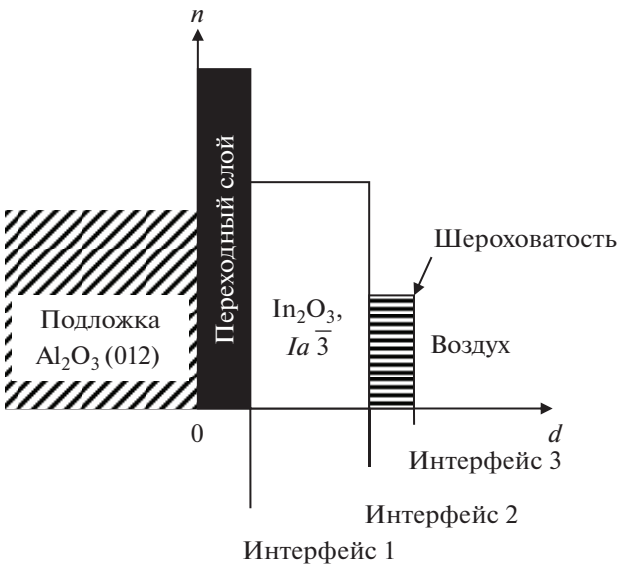


**Рис. 2.** Модель исследованных пленок.

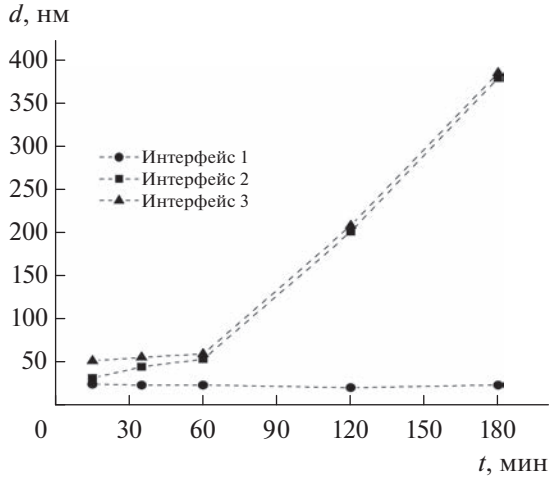


**Рис. 3.** Положение интерфейсов между слоями модели исследованных пленок с различным временем напыления.

неизменной. Это говорит о том, что пленки с большим временем напыления содержат, в среднем, более мелкие кристаллиты. То есть, можно предположить, что в начале напыления на поверхности подложки формируются крупные частицы материала, а затем, в процессе напыления размер возникающих кристаллитов убывает и они заполняют промежутки между более крупными частицами. В дальнейшем же (60–180 мин) толщина поверхностного слоя сохраняется, а общая толщина пленки растет – процесс формирования пленки выходит на стационарный режим.

Формирование переходного слоя на границе с подложкой, возможно, происходит в результате появления примесных уровней внутри запрещенной зоны, а также ее размытия из-за большого количества дефектов кристаллической структуры. Так как его толщина практически не зависит от времени напыления, появление данного слоя полностью обусловлено влиянием поверхности подложки.

## ВЫВОДЫ

Уменьшение наблюдаемой ширины запрещенной зоны исследованных пленок, а также возрастание показателя преломления, уменьшение поверхностной шероховатости и общей толщины пленки в результате отжига, либо при использовании высоких температур подложки в процессе напыления, обусловлено устранением дефектов кристаллической структуры под воздействием высоких температур, в присутствии кислорода, которое сопровождается уплотнением материала пленки. Полученные значения ширины запрещенной зоны согласуются с результатами работ [11, 25–28].

Оптические свойства некоторых пленок $In_2O_3$ указывают на наличие на границе с подложкой дополнительного слоя с запрещенной зоны 1.39 эВ и показателем преломления равным 3. Также, в процессе роста таких пленок происходит изменение размеров кристаллитов – вначале на поверхности подложки формируются крупные частицы материала, а далее промежутки между ними заполняются более мелкими кристаллитами и процесс выходит на стационарный режим.

**Конфликт интересов:** Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Yousif A.A., Hasan M.H.* // J. Biosens. Bioelectron. 2015. V. 6. № 4. P. 1000192. https://doi.org/10.4172/2155-6210.1000192
2. *Liu J., Guo W., Qu F., Feng C., Li C., Zhu L., Zhou J., Ruan S., Chen W.* // Ceramics International. 2014. V. 40. P. 6685. https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2013.11.129
3. *Khalefa A.A., Marei J.M., Radwan H.A., Rzaij J.M.* // Digest J. Nanomaterials and Biostructures. 2021. V. 16. № 1. P. 197.
4. *Manno D., Giulio M.D., Siciliano T., Filippo E., Serra A.* // J. Phys. D: Appl. Phys. 2001. V. 34. P. 2097. https://doi.org/10.1088/0022-3727/34/14/303
5. *Nikolaenko Yu.M., Artemov A.N., Medvedev Yu.B., Efros N.B., Zhikharev I.V., Reshidova I.Yu., Tikhii A.A., Kara-Murza S.V.* // J. Phys. D: Appl. Phys., 2016. V. 49.

P. 375302.
https://doi.org/10.1088/0022-3727/49/37/375302

6. *Kaneko S., Torii H., Soga M., Akiyama K., Iwaya M., Yoshimoto M., Amazawa T.* // Jpn. J. Appl. Phys. 2012. V. 51. № 1S. P. 01AC02.
7. *Yadav S.K., Das S., Prasad N., Barick B.K., Arora S., Sutar D.S., Dhar. S.* // J. Vacuum Science & Technology A. 2020. V. 38. P. 033414.
https://doi.org/0.1116/6.0000038
8. *Du X., Yu J., Xiu X., Sun Q., Tang W., Man. B.* // Vacuum. 2019. V. 167. P. 1.
https://doi.org/10.1016/j.vacuum.2019.05.035
9. *Nistor M., Seiler W., Hebert C., Matei E., Perrière J.* // Applied Surface Science. 2014. V. 307. P. 455.
https://doi.org/10.1016/j.apsusc.2014.04.056
10. *Seiler W., Nistor M., Hebert C., Perrière J.* // Solar Energy Materials and Solar Cells. 2013. V. 116. P. 34.
https://doi.org/10.1016/j.solmat.2013.04.002
11. *Jarzebski M.Z.* // Phys. Stat. Sol. (a). 1982. V. 71. P. 13.
https://doi.org/10.1002/pssa.2210710102
12. *Kim H., Gilmore C.M., Pique A., Horwitz J.S., Mattoussi H., Murata H., Kafafi Z.H., Chrisey D.B.* // J. Appl. Phys. 1999. V. 86. № 11. P. 6451.
https://doi.org/10.1063/1.371708
13. *Higuchi M., Uekusa S., Nakano R., Yokogawa K.* // J. Appl. Phys. 1993. V. 74. № 11. P. 6710.
https://doi.org/10.1063/1.355093
14. *Shigesato Y., Takaki S., Haranoh T.* // J. Appl. Phys. 1992. V. 71. № 7. P. 3356.
https://doi.org/10.1063/1.350931
15. *Николаенко Ю.М., Мухин А.Б., Чайка В.А., Бурховецкий В.В.* // ЖТФ. 2010. Т. 80. № 8. С. 115. [*Nikolaenko Yu.M., Mukhin A.B., Chaika V.A., Burkhovetskii V.V.* // Technical Physics. 2010. V. 55. № 8. P. 1189].
16. *Tikhii A.A., Nikolaenko Yu.M., Zhikhareva Yu.I., Zhikharev I.V.* Spectral and X-ray studies of indium oxide films on sapphire substrates / 7th International Congress on Energy Fluxes and Radiation Effects (EFRE-2020 online): Abstracts. Tomsk: Publishing House of IAO SB RAS, 2020. P. 601.
17. *Тихий А.А., Николаенко Ю.М., Жихарева Ю.И., Жихарев И.В.* // Оптика и спектроскопия. 2020. Т. 128. № 10. С. 1544. [*Tikhii A.A., Nikolaenko Yu.M., Zhikhareva Yu.I., Zhikharev I.V.* // Optics and Spectroscopy. 2020. V. 128. № 10. P. 1667.
https://doi.org/10.1134/S0030400X20100252].
https://doi.org/10.21883/OS.2020.10.50029.138-20
18. *Тихий А.А., Николаенко Ю.М., Жихарева, Корнеевец А.С., Жихарев. И.В.* // Физика и техника полупроводников. 2018. Т. 52. № 3. С. 337. [*Tikhii A.A., Nikolaenko Yu.M., Zhikhareva Yu.I., Kornievets A.S., Zhikharev I.V.* // Semiconductors. 2018. V. 52. P. 320.
https://doi.org/10.1134/S1063782618030223].
https://doi.org/10.21883/FTP.2018.03.45618.8596
19. *Gritskikh V.A., Zhikharev I.V., Kara-Murza S.V., Korchikova N.V., Krasnyakova T.V., Nikolaenko Y.M., Tikhii A.A., Pavlenko A.V., Yurasov Y.I.* Properties of $In_2O_3$ Films, Deposited by dc-Magnetron Sputtering on $Al_2O_3$ Substrates with Different Temperatures // Advanced Materials Techniques, Physics, Mechanics and Applications / Ed. Parinov I.A. at al. Springer Proceedings in Physics, Springer International Publishing AG. 2017. V. 193. P. 55.
https://doi.org/10.1007/978-3-319-56062-5
20. *Tikhii A.A., Gritskikh V.A., Kara-Murza S.V., Korchikova N.V., Nikolaenko Yu.M., Zhikhareva Yu.I., Zhikharev I.V.* Influence of substrate temperature during magnetron sputtering on optical properties of $In_2O_3$ films /European Materials Research Society Spring Meeting 2016 (E-MRS 2016). / Lille, 2016, L.P. 32 https://www.european-mrs.com/2016-spring-symposium-l-european-materials-research-society.
21. *Тихий А.А., Николаенко Ю.М., Бадекин М.Ю., Саяпин В.Н., Иваницын Н.П., Жихарев И.В.* // Вестник ДонНУ. Сер. А: Естественные науки. 2017. Т. 3. С. 112.
22. *Тихий А.А., Жихарева Ю.И., Жихарев И.В.* Оптические исследования пленок оксида индия на сапфировых подложках / Физика А. Санкт-Петербург. Тезисы докладов международной конференции 18–22 октября 2021 г. СПб.: Политех-пресс, 2021. С. 252.
https://dspace.lgpu.org//handle/123456789/5484
23. *Тихий А.А., Свиридова Е.А., Жихарева Ю.И., Жихарев И.В.* // Журн. прикладной спектроскопии. 2021. Т. 88. № 5. С. 743. [*Tikhii A.A., Svyrydova K.A., Zhikhareva Yu.I., Zhikharev I.V.* // J. Applied Spectroscopy. 2021. V. 88. № 5. P. 975.
https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.29.274].
24. *Tompkins H.G., Irene E.A.* Handbook of Ellipsometry. USA: William Andrew Publishing, 2005. 891 p.
25. *Walsh A., Da Silva J.L.F., Wei Su-Huai, Korber C., Klein A., Piper L.F.J., De Masi A., Smith K.E., Panaccione G., Torelli P., Payne D.J., Bourlange A., Egdell R.G.* // Phys. Rev. Lett. 2008. V. 100. P. 167402.
https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.100.167402
26. *Furubayashi Y., Maehara M., Yamamoto T.* // ACS Applied Electronic Materials. 2019. V. 1. № 8. P. 1545.
https://doi.org/10.1021/acsaelm.9b00317
27. *Gupta L., Mansingh A., Srivastava P.K.* // Thin Solid Films. 1989. V. 176. P. 33.
https://doi.org/10.1016/0040-6090(89)90361-1
28. *Schleife A., Neumann M.D., Esser N., Galazka Z., Gottwald A., Nixdorf J., Goldhahn R., Feneberg M.* // New J. Phys. 2018. V. 20. P. 053016.
https://doi.org/10.1088/1367-2630/aabeb0
29. *Ravindra N.M., Ganapathy P., Choi J.* // Infrared Physics & Technology. 2007. V. 50. P. 21.
https://doi.org/10.1016/j.infrared.2006.04.001

# Optical Properties and Structure of $In_2O_3$ Films Deposited on $Al_2O_3$ (012) Substrates by dc-Magnetron Sputtering

**A. A. Tikhii[1, *], Yu. M Nikolaenko[2], K. A. Svyrydova[2, 3], I. V. Zhikharev[2]**

*[1]Lugansk State Pedagogical University, Lugansk, 91011 Russia*

*[2]Donetsk Institute for Physics and Engineering named after A.A. Galkin, Donetsk, 83114 Russia*

*[3]Donbas National Academy of Civil Engineering and Architecture, Makeyevka, 286123 Russia*

**e-mail: ea0000ffff@mail.ru*

The results of studies of the optical properties and structure of $In_2O_3$ films on $Al_2O_3$ (012) substrates deposited by dc-magnetron sputtering are summarized. The investigated films differ in the deposition time, substrate temperature, and the presence of additional heat treatment in air. According to X-ray diffraction measurements, these films show a reflex, which correspond to the (222) plane of the cubic modification of $In_2O_3$. Its exact position and half-width depend on the deposition time. The optical properties of the obtained films are explained by the microstructure, which is inhomogeneous in thickness and formed during the sputtering of a target with a relatively low mechanical strength. Thus, the refractive index of films deposited on substrates at room temperature increases in the direction from the substrate to the external interface. At a substrate temperature of more than 300°C, the refractive index of the films is uniform, except for a rough layer on the surface. Heat treatment reduces the number of defects in the crystal structure of the films, and leads to densification of the film material. As a result, the inhomogeneity of the refractive index disappears and the observed band gap for direct transitions decreases. The latter result from a change in the Burstein–Moss shift in consequence of the decrease of lattice defects concentration. The band gap for "indirect" transitions (that corresponds to the true value of the band gap) is insensitive to annealing.

**Keywords:** indium oxide, films, sapphire, ellipsometry, optical transmission, X-ray diffraction analysis, magnetron deposition, annealing, substrate temperature, deposition time, band gap, optical properties.

УДК 629.7.023.2:535.362

# СВОЙСТВА И ПЕРСПЕКТИВЫ ПРИМЕНЕНИЯ ЛИТИЕВОГО ЖИДКОГО СТЕКЛА В ТЕРМОРЕГУЛИРУЮЩИХ ПОКРЫТИЯХ КОСМИЧЕСКИХ АППАРАТОВ

© 2023 г. М. М. Михайлов[a], *, А. Н. Лапин[a], **, С. А. Юрьев[a], В. А. Горончко[a]

[a] Томский государственный университет систем управления и радиоэлектроники, Томск, 634000 Россия

*e-mail: membrana2010@mail.ru

**e-mail: alexey_nl@mail.ru

Поступила в редакцию 17.09.2022 г.
После доработки 16.11.2022 г.
Принята к публикации 16.11.2022 г.

Выполнено сравнительное исследование радиационной стойкости оптических свойств связующих для терморегулирующих покрытий космических аппаратов: широко используемых жидкого стекла $K_2SiO_3$ и вновь разрабатываемого для этих целей жидкого стекла $Li_2SiO_3$. При исследовании спектров диффузного отражения ($\rho_\lambda$) в диапазоне длин волн 0.2–2.5 мкм и интегрального коэффициента поглощения солнечного излучения ($a_s$) до и после облучения электронами установлена несравненно большая радиационная стойкость жидкого стекла $Li_2SiO_3$ по сравнению со стеклом $K_2SiO_3$. Значения изменений коэффициента поглощения $\Delta a_s$ жидкого стекла $Li_2SiO_3$ в несколько раз меньшие по сравнению с жидким стеклом $K_2SiO_3$: при облучении электронами с энергией 30 кэВ при флуенсе $\Phi = 2 \times 10^{16}$ см$^{-2}$ – в 35 раз; при $\Phi = 4 \times 10^{16}$ см$^{-2}$ – в 25 раз; при $\Phi = 6 \times 10^{16}$ см$^{-2}$ – в 7 раз. Проведен анализ факторов, определяющих радиационную стойкость этих стекол. Преимущество в радиационной стойкости жидкого стекла $Li_2SiO_3$ открывает перспективы его использования в качестве связующих соединений в терморегулирующих покрытиях космических аппаратов, в красках, керамиках и других областях техники и промышленности с наличием ионизирующих излучений.

**Ключевые слова:** литиевое и калиевое жидкое стекло, оптические свойства, полосы поглощения, радиационная стойкость.

**DOI:** 10.31857/S1028096023050138, **EDN:** KVKUZO

## ВВЕДЕНИЕ

В лакокрасочных и керамических терморегулирующих покрытиях (ТРП) космических аппаратов в качестве связующих используют полимерные лаки и смолы или калиевое жидкое стекло. Такие связующие предназначены для образования ТРП, должны обеспечивать необходимую укрывистость, вязкость, сплошность и высокую отражательную способность в солнечном диапазоне спектра (длины волн 0.2–2.5 мкм). Радиационная стойкость всех известных связующих ниже по сравнению с пигментами. Поэтому их концентрация должна быть минимально возможной [1].

В последние годы в АО “Композит” (Роскосмос) разработан ряд покрытий класса “оптические солнечные отражатели” с использованием литиевого жидкого стекла в качестве связующего. Было установлена более высокая стойкость таких покрытий к действию излучения в космическом пространстве по сравнению с аналогичными покрытиями с калиевым жидким стеклом в качестве связующего [2, 3]. Литиевые жидкие стекла помимо космической отрасли широко используют при производстве других типов стекол для наземного применения, в том числе и в устройствах, где применяют различные виды излучений [4–6]. Несмотря на столь широкое применение до настоящего времени не изучены основные факторы, определяющие более длительное сохранение оптических свойств самих жидких стекол $Li_2SiO_3$ и покрытий с их использованием по сравнению с жидким стеклом $K_2SiO_3$ под действием излучения.

Целью настоящей работы являлось исследование оптических свойств и радиационной стойкости жидкого стекла $Li_2SiO_3$ и сравнение с радиационной стойкостью жидкого стекла $K_2SiO_3$ для ТРП космических аппаратов.

## МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

Для приготовления образцов использовали водный раствор лития кремнекислого с кремне-

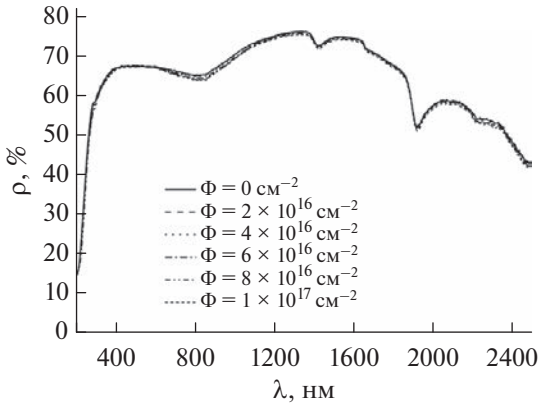


**Рис. 1.** Спектры диффузного отражения жидкого стекла $Li_2SiO_3$ до и после облучения электронами с энергией 30 кэВ при флуенсе (2–10) × $10^{16}$ см$^{-2}$.

земистым модулем 3.2 (мольное отношение кремнезема к окиси лития $SiO_2/Li_2O$) квалификации х. ч., изготовленного в соответствии с ТУ 2621-284-00209192-2009 (далее – литиевое жидкое стекло).

Перед нанесением образцов покрытия подложки диаметром 24 мм из алюминия АМг6 по ГОСТ 4784 готовили следующим образом. Обезжиривали поверхность подложки двукратной протиркой ветошью, смоченной в ацетоне. Для придания поверхности подложки шероховатости выполняли обработку шлифовальной бумагой до полного удаления глянца в двух перпендикулярных направлениях. Для устранения зеркального блеска поверхность подложки обрабатывали водным раствором NaOH, а затем водным раствором азотной кислоты. После промывания дистиллированной водой поверхность подложки сушили в сушильном шкафу при температуре 150°С.

Нанесение $Li_2SiO_3$ на металлические подложки осуществляли в следующей последовательности. Подготовленную описанным выше способом подложку обезжиривали ацетоном. Жидкое стекло доводили до рабочей вязкости путем добавления дистиллированной воды, тщательно перемешивали и переливали в герметичную емкость. Для улучшения адгезии и предотвращения растрескивания небольшое количество жидкого стекла наносили на подложку и втирающими движениями удаляли его с помощью ветоши таким образом, чтобы на поверхности подложки остался тонкий слой жидкого стекла. После этого подложку с нанесенным тонким слоем стекла высушивали в течение 8 ч на воздухе. Кистью наносили жидкое стекло или покрытие на его основе тонкими слоями (толщина каждого слоя не более 50 мкм), равномерно распределяя по поверхности подложки. Для изготовления каждого образца наносили 3–4 слоя до достижения толщины покрытия примерно 150 мкм. Каждый слой высушивали не менее 12 ч.

Аналогично наносили на подложки калиевое жидкое стекло. Для сравнения радиационной стойкости различных связующих для ТРП кроме жидких стекол исследовали лак КО-921. Его наносили на металлическую подложку кистью, общая толщина покрытия составляла 150 мкм, полное высыхание происходило на воздухе при комнатной температуре.

Спектры диффузного отражения $\rho_\lambda$ в диапазоне длин волн 0.2–2.5 мкм всех образцов (жидких стекол $Li_2SiO_3$ и $K_2SiO_3$ и лака КО-921) в исходном состоянии и после каждого периода облучения электронами с энергией 30 кэВ флуенсом Φ = = (2–4) × $10^{16}$ см$^{-2}$ регистрировали в вакууме ($P$ = = 1 × $10^{-6}$ торр) *in situ* с помощью встроенной в камеру установки “Спектр” интегрирующей сферы [4]. Облучение осуществляли при температуре 300 K. Регистрацию ИК-спектров отражения в диапазоне от 400 до 4000 см$^{-1}$ исходных образцов жидких стекол $Li_2SiO_3$ и $K_2SiO_3$ выполняли на ИК Фурье спектрометре Shimadzu IRTracer-100 с приставкой для измерения диффузного отражения DRS-8000A.

## ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

### *Спектры диффузного отражения в области 200–2500 нм*

Край основного поглощения в спектрах $\rho_\lambda$ образцов $Li_2SiO_3$ расположен при 191 нм (рис. 1). Эта величина соответствует значению ширины запрещенной зоны $E_g$ = 6.49 эВ. Максимальное значение коэффициента отражения (ρ) достигает 75% в области около 1400 нм. С увеличением длины волны коэффициент отражения уменьшается и при λ = 2500 нм составляет 42%. В спектрах $\rho_\lambda$ зарегистрированы локальные минимумы при 803, 1420, 1920 и 2220 нм, обусловленные полосами поглощения ОН-групп [5–7]. После облучения электронами спектры ρ изменяются незначительно: край основного поглощения смещается на несколько нм в длинноволновую область, коэффициент отражения уменьшается в УФ и видимой областях на несколько %.

Рассчитаны разностные спектры диффузного отражения ($\Delta\rho_\lambda$) вычитанием спектров после облучения ($\rho_{\lambda f}$) из спектров до облучения ($\rho_{\lambda 0}$):

$$\Delta\rho_\lambda = (\rho_{\lambda 0} - \rho_{\lambda f}). \quad (1)$$

Такие спектры (рис. 2) являются спектрами поглощения, наведенного действием электронного пучка. В них регистрируется полосы поглощения в УФ, видимой и ближней ИК областях при 235, 255–270, 370, 695, 850 и 980 нм. Интен-

сивность всех полос небольшая, наиболее интенсивная полоса при 235 нм достигает 4.3% после облучения при максимальном флуенсе электронов $\Phi = 1 \times 10^{17}$ см$^{-2}$.

Зарегистрированные полосы поглощения могут определяться дефектами, образованными при облучении в составляющих стекла $Li_2O$ и $SiO_2$. Такими дефектами в оксидных соединениях, как правило, являются анионные и катионные вакансии и междоузельные анионы и катионы в различном зарядовом состоянии и их комплексы.

Аналогичные результаты получены и для калиевого жидкого стекла. На рис. 3 приведены спектры $\rho_{\lambda 0}$ и $\rho_{\lambda f}$ этого стекла. Край основного поглощения составляет 280 нм, что соответствует значению $E_g = 4.29$ эВ. Максимальное значения коэффициента отражения составляет 75% и соответствует той же области около 1400 нм, как и для стекла $Li_2SiO_3$. С увеличением длины волны коэффициент отражения уменьшается и при $\lambda = 2500$ нм равен 27%. В спектрах $\rho_\lambda$ также, как и для стекла $Li_2SiO_3$, зарегистрированы локальные минимумы при 803, 1420, 1920 и 2220 нм, обусловленные полосами поглощения ОН-групп. Облучение электронами приводит к небольшим изменениям коэффициента отражения в УФ и видимой областях спектра. Так же, как и для жидкого стекла $Li_2SiO_3$, при облучении происходит незначительное смещение края основного поглощения в длинноволновую область спектра.

В разностных спектрах $\Delta\rho_\lambda$ (рис. 4) присутствуют полосы поглощения при 300, 400, 585 и 825 нм. Наиболее интенсивной является полоса при 300 нм. Полоса при 585 нм является сложной, на ее обоих фронтах заметны выступы. Это указывает на наличие не менее трех элементарных полос поглощения, входящих в эту интегральную полосу. С увеличением флуенса электронов интенсивность всех полос возрастает. В области $\lambda > 1000$ нм значения $\Delta\rho$ составляют менее 0.5%.

### *ИК-спектры отражения стекол $Li_2SiO_3$ и $K_2SiO_3$*

На рис. 5 показаны ИК-спектры отражения жидких стекол $Li_2SiO_3$ и $K_2SiO_3$. Полосы поглощения в этих спектрах одной и той же природы. Это позволяет предположить, что природа полос одинакова: полосы обусловлены различными типами колебаний молекул $SiO_2$ и их составляющих, а также различных поверхностных соединений. Интенсивность некоторых полос одинакова (1087 и 650 см$^{-1}$). Интенсивность таких полос, как 1400, 1591, 1639, 3145 и 3540 см$^{-1}$ больше в спектре стекла $Li_2SiO_3$, а у полос при 860 и 2624 см$^{-1}$ она меньше по сравнению с полосами в спектре стекла $K_2SiO_3$.

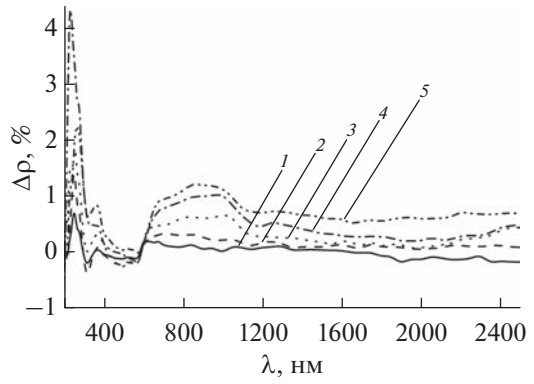


**Рис. 2.** Разностные спектры отражения жидкого стекла $Li_2SiO_3$ после облучения флуенсом электронов с энергией 30 кэВ: 2 (*1*); 4 (*2*); 6 (*3*); 8 (*4*); $10 \times 10^{16}$ см$^{-2}$ (*5*).

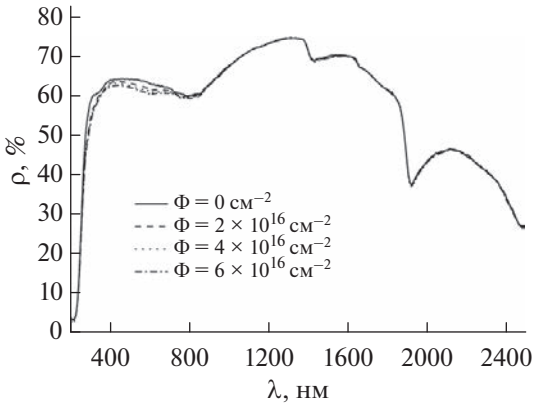


**Рис. 3.** Спектры диффузного отражения жидкого стекла $K_2SiO_3$ до и после облучения флуенсом электронов $(2–6) \times 10^{16}$ см$^{-2}$ с энергией 30 кэВ.

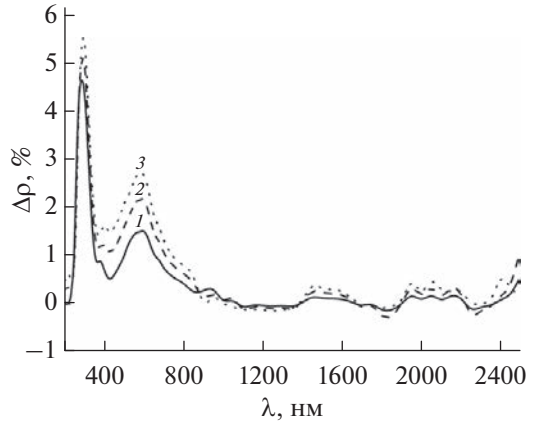


**Рис. 4.** Разностные спектры отражения жидкого стекла $K_2SiO_3$ после облучения флуенсом электронов с энергией 30 кэВ: 2 (*1*); 4 (*2*); $6 \times 10^{16}$ см$^{-2}$ (*3*).

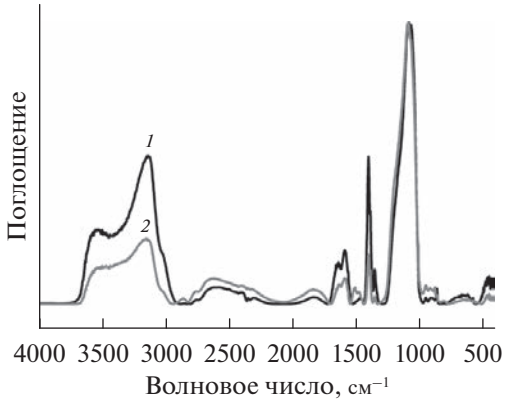


**Рис. 5.** ИК-спектры жидких стекол $Li_2SiO_3$ (*1*) и $K_2SiO_3$ (*2*).

Полосы в диапазоне от 2400 до 3700 $см^{-1}$ могут быть обусловлены валентными колебаниями гидроксильных групп [8]: поверхностными (3400–3700 $см^{-1}$ [9–11] и связанными водородной связью с кислородом (3400 $см^{-1}$).

В области волновых чисел от 610 до 1440 $см^{-1}$ имеются полосы, характерные для диоксида кремния [12–14]: такие полосы обусловлены колебаниями мостикового кислорода Si–O–Si (460, 810 и 1110 $см^{-1}$); валентными симметричными колебаниями Si–Si (615 $см^{-1}$); скручивающими колебаниями $SiO_2$ (805 $см^{-1}$).

Такое же объяснение природы полос поглощения в области 850–1100 $см^{-1}$ дано в работах [12–14]: асимметричные колебания мостиковых связей Si–O–Si, а также симметричные колебания концевых связей Si–O.

### *Интегральный коэффициент поглощения солнечного излучения*

Поскольку исследуемое материалы (жидкие стекла $K_2SiO_3$ и $Li_2SiO_3$ и лак КО-921) предназначены для использования в качестве связующих ТРП для космических аппаратов, то представляют интерес расчеты интегрального коэффициента поглощения солнечного излучения ($a_s$) и его изменений ($\Delta a_s$) после облучения электронами образцов покрытий. Расчеты осуществляли путем разбиения спектра излучения Солнца (длины волн 0.2–2.5 мкм) на равноэнергетические участки по известной методике Джонсона [15], определения коэффициента отражения в этих участках и среднего значения с использованием Международных стандартов [16, 17]. Для необлученных образцов значения коэффициента поглощения жидких стекол близки: 0.36 для стекла $K_2SiO_3$ и 0.38 для стекла $Li_2SiO_3$.

На рис. 6 приведены полученные зависимости $\Delta a_s$ в выбранных трех связующих от флуенса электронов. Из рис. 6 следует, что кинетика и абсолютные значения изменений коэффициента поглощения значительно отличаются. Для стекла $Li_2SiO_3$ заметны две стадии в его изменении, для стекла $K_2SiO_3$ и лака КО-921 – одна.

Сравнение значений $\Delta a_s$ этих связующих при одинаковом флуенсе электронов (табл. 1) показывает их значительное отличие. Значения $\Delta a_s$ жидкого стекла $Li_2SiO_3$ в несколько раз меньшие по сравнению с жидким стеклом $K_2SiO_3$ и лаком КО-921: при $\Phi = 2 \times 10^{16}$ $см^{-2}$ – в 35 и 355 раз; при $\Phi = 4 \times 10^{16}$ $см^{-2}$ – в 25 и 305 раз; при $\Phi = 6 \times 10^{16}$ $см^{-2}$ – в 7 и 81 раз соответственно. Эти потоки электронов с энергией 30 кэВ соответствуют потокам энергии, соответственно, $6.0 \times 10^{20}$, $1.2 \times 10^{21}$ и $2.4 \times 10^{21}$ эВ · $см^{-2}$.

О том, что радиационная стойкость жидких стекол $K_2SiO_3$ выше по сравнению с полимерными связующими известно из результатов многих экспериментальных исследований [1]. Сравнительные данные по радиационной стойкости жидких стекол $Li_2SiO_3$ и $K_2SiO_3$ отсутствуют. Поэтому полученное увеличение радиационной стойкости жидкого стекла $Li_2SiO_3$ по сравнению с

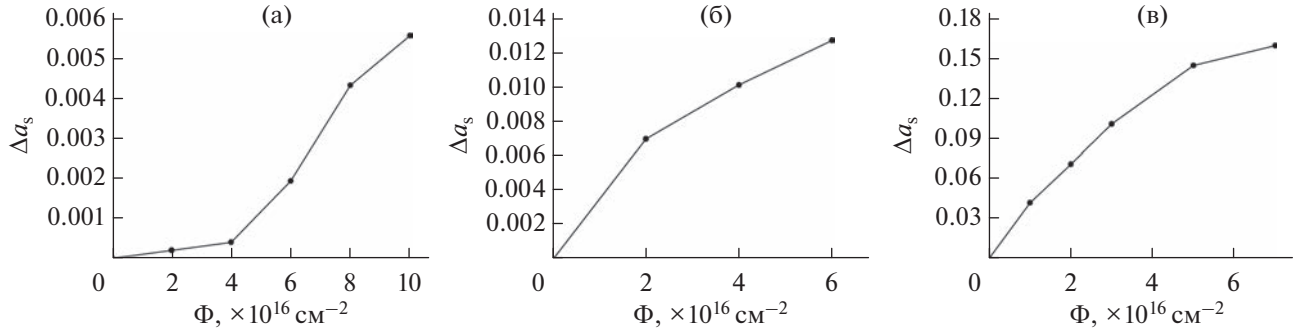


**Рис. 6.** Зависимость изменений коэффициента поглощения $a_s$ от флуенса электронов жидких стекол $Li_2SiO_3$ (а), $K_2SiO_3$ (б) и лака КО-921 (в).

**Таблица 1.** Зависимости значений $\Delta a_s$ различных связующих для ТРП при облучении от флуенса электронов

| Ф, $\times 10^{16}$ см$^{-2}$ | 2 | 4 | 6 |
|---|---|---|---|
| $Li_2SiO_3$ | 0.0002 | 0.0004 | 0.0019 |
| $K_2SiO_3$ | 0.0070 | 0.0100 | 0.0130 |
| КО-921 | 0.0710 | 0.1220 | 0.1530 |

$K_2SiO_3$ показывает перспективность использования жидкого стекла $Li_2SiO_3$ в керамических покрытиях и изделиях, работающих в условиях действия ионизирующего излучения.

*Факторы, влияющие на радиационную стойкость жидких стекол и кремнийорганического лака*

Радиационную стойкость жидких стекол во многом определяет их модуль ($M$), который можно рассчитать по выражению:

$$M = m\mathrm{SiO_2}/m\mathit{Me}\mathrm{O_2}, \qquad (2)$$

где $m\mathrm{SiO_2}$ и $m\mathit{Me}\mathrm{O_2}$ – массы молекул $SiO_2$ и $\mathit{Me}O_2$ в составе жидкого стекла, $Me$ – тип катиона.

Для стекла $K_2SiO_3$, используемого в настоящем исследовании $M$ = 3.9 и, в соответствии с формулой (2), получаем вклад молекул $SiO_2$ в общую массу равный 38.5%, вклад молекул $K_2O$ – 61.5%. Для используемого в настоящем исследовании стекла $Li_2SiO_3$ с $M$ = 3.2 вклад молекул $SiO_2$ в общую массу равен 64%, вклад молекул $Li_2O$ – 36%. Эти расчеты показывают, что в калиевом жидком стекле число молекул аморфного диоксида кремния на одну молекулу кристаллического $K_2O$ составляет 6.2, а в литиевом жидком стекле – всего 1.8. (отличие в 3.4 раза).

Сведения о сохранении оптических свойств кристаллических составляющих рассмотренных стекол – оксидов $K_2O$ и $Li_2O$ – в условиях облучения к настоящему времени отсутствуют. Можно лишь предположить, что при близкой чистоте и концентрации примесей и при большей ширине запрещенной зоны радиационная стойкость оксида $Li_2O$ должна быть не хуже по сравнению со стеклом $K_2O$.

Другим фактором, определяющим радиационную стойкость этих стекол, является наличие аморфной фазы $SiO_2$, которой в стекле $K_2SiO_3$ в 3.4 раза больше по сравнению со стеклом $Li_2SiO_3$. Такое аморфное соединение $SiO_2$ наносили в виде одного или двух слоев на поверхность порошков, например, $ZrO_2$ или $SrZrO_3$ и получали увеличение радиационной стойкости [18]. Другим примером является модифицирование оксидных порошков наночастицами $SiO_2$, выступающими в роли центров релаксации первичных дефектов (электронов и дырок), образованных действием ионизирующего излучения в таких порошках [19, 20]. Поэтому радиационная стойкость калиевого жидкого стекла с учетом этого фактора должна быть выше по сравнению с литиевым жидким стеклом.

Третьим фактором, влияющим на радиационную стойкость этих стекол, может быть значение ширины запрещенной зоны оксидных соединений, которое составляет 4.29 эВ для $K_2O$ и 6.29 эВ для $Li_2O$. Отличие значений $E_g$ составляет 1.47 раз. При энергии электронов 30 кэВ единственным процессом их взаимодействия с этими оксидами является ионизационный. Число образованных электронно-дырочных пар будет определяться соотношением потока энергии и значения ширины запрещенной зоны. При одинаковой величине потока энергии электронов число образованных при облучении первичных дефектов – электронно-дырочных пар – в $Li_2O$ должно быть меньше по сравнению с $K_2O$ в 1.47 раз.

Четвертым фактором, определяющим изменение интегрального коэффициента поглощения $\Delta a_s$ при облучении, является энергетическое положение полос поглощения образованных облучением дефектов и спектра излучения Солнца. В спектрах $\Delta\rho_\lambda$ $Li_2O$ первые высокоинтенсивные полосы поглощения расположены при 235 и 255–270 нм, а в спектрах $\Delta\rho_\lambda$ $K_2O$ – при 300 и 400 нм. В спектре излучения Солнца в области 200–270 нм интенсивность излучения почти не изменяется, а в области 270–400 нм резко увеличивается (табл. 2). Поэтому вклад этих полос поглощения в результирующее значение коэффициента $a_s$ будет различным: от спектра $\Delta\rho_\lambda$ $Li_2O$ он будет много меньшим по сравнению со спектром $K_2O$.

Поскольку радиационную стойкость этих стекол, как и других связующих и самих ТРП, оценивают по величине изменений коэффициента поглощения $\Delta a_s$ после воздействия излучений, то такое отличие будет увеличивать радиационную стойкость литиевого жидкого стекла по сравнению с калиевым [21]. Первые несколько средних значений длин волн в равноэнергетических участках спектра излучения Солнца, определяю-

**Таблица 2.** Спектральное распределение освещенности, создаваемой Солнцем вне земной атмосферы

| λ, нм | 200 | 220 | 240 | 260 | 280 | 300 | 340 | 380 | 420 | 460 |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| $Q$, мкВт/см$^2\cdot$ мкм | 1.07 | 5.75 | 6.30 | 13.00 | 22.20 | 51.40 | 107.40 | 112.00 | 174.70 | 206.60 |

щих значения коэффициента поглощения $a_s$ согласно методике [15], составляют 315, 366, 408, 438 и 464 нм. В этих точках определяют значения коэффициента отражения до облучения $\rho_0$, после облучения $\rho_f$ и их разность $\Delta\rho$, по которым и рассчитывают значения интегрального коэффициента поглощения до облучения $a_{s0}$, после облучения $a_{sf}$ и их разность $\Delta a_s$.

Сравним значения длин волн 315, 366, 408, 438, 464 нм со значениями максимумов полос поглощения в спектрах $\Delta\rho_\lambda$ этих стекол. В спектрах $\Delta\rho_\lambda$ стекла $Li_2SiO_3$ (рис. 2) зарегистрированы полосы поглощения при 235, 255–270, 370, 695 нм. Первые две самых интенсивных полосы не будут влиять на значения $\Delta a_s$, а полоса при 370 нм будет влиять лишь частично (не в максимуме). В промежутке спектра с расчетными точками при 408, 438 и 464 нм также отсутствуют полосы поглощения. В спектре $\Delta\rho_\lambda$ жидкого стекла $K_2SiO_3$ (рис. 4) регистрируются полосы при 300, 400, 585 и 825 нм. Первая полоса учитывается не в самом максимуме, а вторая (400 нм) практически в максимуме.

Поскольку все другие точки для расчетов значений $\Delta a_s$ в спектрах обоих жидких стекол соответствуют меньшим значениям $\Delta\rho$ по сравнению с рассмотренными коротковолновыми полосами, то разность их вклада будет значительной. Поэтому данный фактор оказывает заметное влияние при определении радиационной стойкости этих двух типов жидких стекол по значениям $\Delta a_s$ после их облучения.

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Выполнены сравнительные исследования спектров диффузного отражения и интегрального коэффициента поглощения солнечного излучения и их изменений после облучения электронами ($E$ = 30 кэВ, $\Phi = (1–6) \times 10^{16}$ см$^{-2}$) жидких стекол $Li_2SiO_3$ и $K_2SiO_3$. Установлена более высокая радиационная стойкость стекла $Li_2SiO_3$ по сравнению со стеклом $K_2SiO_3$. Предпосылками высокой радиационной стойкости стекла $K_2SiO_3$ является высокий модуль ($M$ = 3.9) и большее в 6.2 раз число молекул $SiO_2$ (обладающих высокой радиационной стойкостью и защитными свойствами) на одну молекулу $K_2O$ по сравнению со стеклом $Li_2SiO_3$ ($M$ = 3.2). Однако большое значение ширины запрещенной зоны ($E_g$ = 6.49 эВ) и малая интенсивность излучения Солнца в области края основного поглощения ($Q_1$ = 1 мкВт · см$^{-2}$ · мкм$^{-1}$ при $\lambda_{g2}$ = 191 нм) обуславливают более высокую радиационную стойкость стекла $Li_2SiO_3$ по сравнению со стеклом $K_2SiO_3$ ($E_g$ = 4.43 эВ, $Q_2$ = = 22 мкВт · см$^{-2}$ · мкм$^{-1}$ при $\lambda_{g2}$ = 280 нм). Такое преимущество в радиационной стойкости позволит широко использовать литиевое жидкое стекло в качестве связующих соединений в терморегулирующих покрытиях космических аппаратов, в красках, керамиках и других областях техники и промышленности с наличием ионизирующих излучений.

## БЛАГОДАРНОСТИ

Работа выполнена при финансовой поддержке Министерства науки и высшего образования Российской Федерации, Программы стратегического академического лидерства “Приоритет 2030”, проект “Науки о космосе и инжиниринг”.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Михайлов М.М.* Спектры отражения терморегулирующих покрытий космических аппаратов. Том 1. Томск: Изд-во Томского университета, 2007. 314 с.
2. Thermal Control Coatings. Nonmetallic Materials. JSC “Kompozit”. Cited 16 September 2022. https://kompozit-mv.ru/index.php/nemetallicheskie-materialy/lakokrasochnye-termoreguliruyushchie-pokrytiya.html
3. *Токарь С.В., Баринова О.П.* // Техника и технология силикатов. 2019. Т. 26. № 1. С. 6.
4. *Kositsyn L.G., Mikhailov M.M., Kuznetsov N.Y., Dvoretskii M.I.* // Instrum. Experimental Tech. 1985. V. 28. P. 929.
5. *Burns D.A., Ciurczak E.W.* Handbook of Near-Infrared Analysis. Dekker: N.Y., 2001. 814 p.
6. *Blanco M., Coello J., Iturriaga H., Maspoch S., Pezuela C.* // Analyst. 1998. V. 123. P. 135. https://www.doi.org/10.1039/A802531B
7. *Brauer G., Anwand W., Grambole D., Grenzer J., Skorupa W., Čížek J., Kuriplach J., Procházka I., Ling C.C., So C.K., Schulz D., Klimm D.* // Phys. Rev. B. 2009. V. 79. P. 115212. https://www.doi.org/10.1103/PhysRevB.79.115212
8. *Davydov A.* Molecular Spectroscopy of Oxide Catalyst Surfaces. Chichester: John Wiley & Sons Ltd, 2003. 641 p.
9. *Boccuzzi F., Morterra C., Scala R., Zecchina A.* // J. Chem. Soc. Faraday Trans. II. 1981. V. 77. P. 2059. https://www.doi.org/10.1039/F29817702059
10. *Keyes B.M., Gedvilas L.M., Li X., Coutts T.J.* // J. Crystal Growth. 2005. V. 281. P. 297. https://www.doi.org/10.1016/j.jcrysgro.2005.04.053
11. *Noei H., Qiu H., Wang Y., Löffler E., Wöll C., Muhler M.* // Phys. Chem. Chem. Phys. 2008. V. 10. P. 7092. https://www.doi.org/10.1039/b811029h
12. *Cooper C.D., Mustard J.F.* // Icarus. 1999. V. 142. Iss. 2. P. 557. https://www.doi.org/10.1006/icar.1999.6221
13. *Окабе Х.* Фотохимия малых молекул. М.: Мир, 1981. 504 с.
14. *Shardakov N.T.* // Glass Phys. Chem. 2021. V. 47. № 6. P. 548. https://www.doi.org/10.1134/S1087659621060250

15. *Johnson F.S.* // J. Meteorological. 1954. V. 11. № 6. P. 431.
16. ASTM E490-00a Standard Solar Constant and Zero Air Mass Solar Spectral Irradiance Tables, 2005.
17. ASTM E903-96 Standard Test Method for Solar Absorptance, Reflectance, and Transmittance of Materials Using Integrating Spheres, 2005.
18. Патент 2160294 (РФ). Дата подачи заявки: 10.07.1998г. Модификатор для светоотражающих покрытий на основе диоксида циркония / Томский политехнический университет. Владимиров В.М., Михайлов М.М. // Опубликован 10.12.2000 г.
19. *Нещименко В.В.* Исследование структуры, свойств и радиационной стойкости оксидных порошков, модифицированных наночастицами. Дис. ... д-ра физико-математических наук: 01.04.07. Томск: ТУСУР. 2017. 273 с.
20. *Hong R., Pan T., Qian J., Li H.* // Chem. Engineering J. 2006. V. 119. P. 71. https://www.doi.org/10.1016/j.cej.2006.03.003
21. *Макарова Е.А., Харитонов А.В.* Распределение энергии Солнца и солнечная постоянная. М.: Наука, 1972. 88 с.

# Properties and Prospects for Application of Lithium Liquid Glass in Thermal Control Coatings of Spacecraft

**M. M. Mikhailov[1, *], A. N. Lapin[1, **], S. A. Yuryev[1], V. A. Goronchko[1]**

*[1]Tomsk State University of Control Systems & Radioelectronics, Tomsk, 634000 Russia*

**e-mail: membrana2010@mail.ru*

***e-mail: alexey.lapin@tusur.ru*

A comparative study of the radiation resistance of the optical properties of binders for spacecraft thermostatic housings was carried out: widely sold liquid glass $K_2SiO_3$ and newly developed liquid glass $Li_2SiO_3$. At the analisis of diffuse reflection spectra ($\rho_\lambda$) in the wavelenght range 0.2–2.5 μm and the integral radiation absorption coefficient ($a_s$) both before and after electron radiation, an incomparably higher radiation resistance of $Li_2SiO_3$ liquid glass compared to $K_2SiO_3$ glass was established. The values of the change in the absorption coefficient $\Delta a_s$ of liquid glass $Li_2SiO_3$ comparing to one of $K_2SiO_3$ liquid glass are several times less: for electron radiation with an estimate of 30 keV at a fluence $\Phi = 2 \times 10^{16}$ cm$^{-2}$ – 35 times; at $\Phi = 4 \times 10^{16}$ cm$^{-2}$ – 25 times; at $\Phi = 6 \times 10^{16}$ cm$^{-2}$ – 7 times. Analysis of of the factors that determine the radiation resistance of these glasses was made. The advantage in the radiation resistance of $Li_2SiO_3$ liquid glass is making it prospective for use as connecting compounds in thermal control coatings of spacecraft, in paints, ceramics and other areas of technology and industry with the presence of ionizing traces.

**Keywords:** lithium and potassium liquid glass, optical properties, absorption bands, radiation resistance.

УДК 538.951:53.084

# РАСШИРЕНИЕ ВОЗМОЖНОСТЕЙ ГИБРИДНОГО РЕЖИМА АТОМНО-СИЛОВОГО МИКРОСКОПА В ДВУХЗОНДОВОМ МАНИПУЛЯТОРЕ

**© 2023 г. А. А. Жуков***

*Институт физики твердого тела РАН, Черноголовка, 142432 Россия*

**e-mail: azhukov@issp.ac.ru*

Поступила в редакцию 26.07.2022 г.
После доработки 20.09.2022 г.
Принята к публикации 20.09.2022 г.

Представлен обзор расширения возможностей гибридного режима работы атомно-силового микроскопа, который является основным для двухзондового манипулятора атомно-силового микроскопа. Представлены варианты улучшения работы системы обратной связи атомно-силового микроскопа, которые существенно понижают шум в режиме сканирования рельефа. Продемонстрирована возможность применения данного режима для широкого класса зондов как упругих, таких как стандартные вольфрамовые зонды и стеклянные капилляры, так и жестких, например, как сапфировые зонды с диаметром скругления в десятки микрометров. Приведены примеры использования данного режима при измерении проводимости исследуемого образца, а также измерении силы адгезии нановискеров к кремниевой подложке. Кроме того, показано использование данного манипулятора атомно-силового микроскопа в микро- и нанофлюидике, такое как перемещение, соединение и разделение капель жидкости, а также создание капель определенного объема. Приведены примеры различных способов перемещения нановискеров по поверхности кремниевой подложки. Показана возможность манипулирования нановискером при помощи потока жидкости, формируемого зондом манипулятора атомно-силового микроскопа, т.е. без касания зондом самого нановискера.

**Ключевые слова:** сканирующая зондовая микроскопия, нановискеры, микрофлюидика.

**DOI:** 10.31857/S1028096023050187, **EDN:** KPFNGL

## ВВЕДЕНИЕ

В настоящее время все большее внимание уделяют созданию образцов микро- и наноразмеров, таких как ван-дер-ваальсовые кристаллы, двуслойный скрученный графен и т.д., с использованием различных микро- и наноманипуляторов [1, 2]. В качестве таких инструментов используют как стандартные манипуляторы, доступные на рынке, так и однозондовые или многозондовые атомно-силовые микроскопы (АСМ) [3–5]. Преимуществом АСМ перед обычными манипуляторами является контролируемая сила воздействия на поверхность, которую регулирует система обратной связи микроскопа. Однако в большинстве АСМ данная система является оптической и достаточно громоздкой, что приводит к невозможности работы такого АСМ в сочетании с прямым оптическим микроскопом, имеющим рабочее расстояние объектива в несколько мм. Данная проблема может быть решена применением в АСМ кварцевого резонатора в качестве элемента регистрации в системе обратной связи [6, 7]. Настоящий обзор посвящен перечню улучшений и расширению возможностей манипулятора, который представляет из себя двухзондовый АСМ с независимыми системами обратной связи. Каждый АСМ работает в так называемом гибридном режиме, совмещающем классические резонансные и контактный режимы АСМ. В настоящей работе показаны успешные применения различных вариантов зондов в микрофлюидике, манипулировании нановискерами на поверхности кремния, транспортных измерениях и так далее.

## ИСПОЛЬЗОВНИЕ МЕТАЛЛИЧЕСКИХ ЗОНДОВ В ГИБРИДНОМ РЕЖИМЕ

Изначально гибридный режим АСМ [7] был разработан для применения со стандартными металлическими зондами, изготовленными из W или PtIr. Стандартное химическое травление позволяет добиваться радиуса скругления таких зондов 20–30 нм и жесткости зондов 30–40 Н/м, жесткость зондов из вольфрама была измерена экспериментально [7]. Следует отметить, что в используемом гибридном режиме зонд устанавливают на кварцевый резонатор под углом от 20

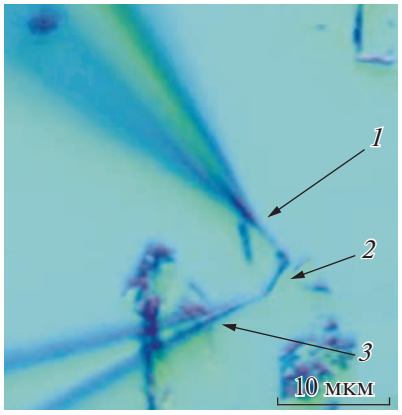


**Рис. 1.** Оптическое изображение двух зондов из вольфрама (*1* и 3) и пучка InAs нановискеров между ними (*2*), лежащих на кремниевой подложке. Расстояние между зондами составляет 5 мкм, постоянная сила прижима зондов к поверхности поддерживается системами обратной связи АСМ.

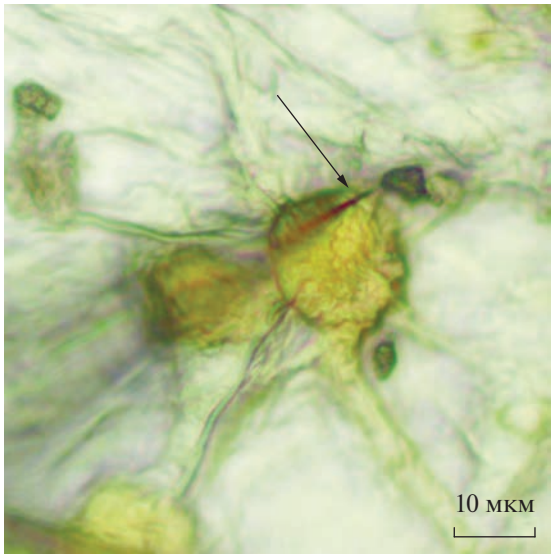


**Рис. 2.** Оптическое изображение зонда из вольфрама (отмечен стрелкой), острие которого лежит на поверхности клетки чешуйки лука. Постоянная сила прижима зонда к поверхности поддерживается системой обратной связи АСМ.

до 30 градусов к плоскости подложки [7], и, несмотря на то, что сигналом обратной связи служит амплитуда колебаний кварцевого резонатора, само острие от поверхности не отрывается, благодаря гибкости зонда. То есть данный режим является по сути резонансным полноконтактным. Более подробно его реализация, а также особенности данного режима работы изложены в [7]. Пример позиционирования двух зондов около концов пучка нановискеров InAs для измерения его проводимости по двухконтактной схеме представлен на рис. 1, а пример помещения зонда из W на поверхности клетки лука на рис. 2. На представленных изображениях объектив оптического микроскопа расположен над головкой АСМ.

Зонды, изготовленные из проволоки PtIr, позволяют добиваться омического контакта с поверхностью и проводить транспортные измерения с применением тока до 1 мкА [7]. Для проведения измерений сил адгезии [7], а также для манипулирования нанообъектами на поверхности подложки, более удобными являются острия, изготовленные стандартным химическим травлением из вольфрамовой проволоки. Для манипулирования нановискерами следует использовать зонды с радиусом скругления острия, сравнимым или меньше радиуса перемещаемого нановискера. В противном случае при попытке перемещения нановискера происходит его вдавливание в поверхность подложки, и результатом такой операции, как правило, будет разрушение нановискера, а не его перемещение.

Такие острия, кроме того, являются достаточно удобными, в том числе, и для перемещения микрокапель жидкости. В работе [8] приведены примеры не только манипулирования микрокаплями, т.е. применение манипулятора в микрофлюидике [9], но также показана возможность перемещения нановискеров по поверхности оксида кремния потоком жидкости. Таким образом, реализовано перемещение нанообъектов по поверхности подложки без прямого касания их острием АСМ, т.е. наиболее безопасным для объектов способом. Улучшение работы системы обратной связи АСМ за счет искусственного снижения добротности кварцевого резонатора уменьшило шум в вертикальном направлении до 10 нм [8]. Это позволило проводить перемещение нанообъектов по поверхности подложки более контролируемым образом.

Следует отдельно отметить принципиальное отличие в системе пьезодвигателей манипулятора от остальных многозондовых АСМ, как изготовленными исследовательскими группами [3, 4], так и доступными на рынке [5]. В используемом манипуляторе применено полунезависимое управление вспомогательным зондом [7]. Данное решение позволяет полностью исключить влияние ползучести (“крипа”) пьезокерамики вспомогательного зонда при перемещении более крупных вискеров, имеющих диаметр 500 нм и длину 10 мкм, между подложками в случае одновременного применения двух зондов [7].

## ПРИМЕНЕНИЕ СТЕКЛЯННЫХ КАПИЛЛЯРОВ В КАЧЕСТВЕ ЗОНДОВ МАНИПУЛЯТОРА АТОМНО-СИЛОВОГО МИКРОСКОПА

В настоящее время стеклянные капилляры диаметром на конце канала несколько мкм и менее

являются одним из видов стандартных зондов [10]. Они позволяют проводить измерения проводимости растворов [11–15], осуществлять доставку лекарств адресно, в выбранную клетку [16, 17], выполнять операции на внутриклеточном уровне [18]. Кроме бесконтактного измерения топографии, растровые микроскопы, измеряющие ионную проводимость, могут быть использованы также для измерения упругости [19], поверхностного заряда [20] и проводимости [21], т.е. величин, которые ранее измеряли локально с применением АСМ. Также следует отметить крайне перспективную и развиваемую в настоящее время технику, которая объединяет возможности двух методик, а именно, АСМ и растрового ионного микроскопа, что существенным образом облегчает получение информации о топографии исследуемого объекта без привязки к силе протекающего тока, и которая применима в растворах с предельно малой концентрацией ионов. С помощью данной техники была визуализирована разница между исходной и восстановленной мембранами [22] и визуализировано наличие процесса диффузии через единичную пору нанометрового размера [23]. Столь широкое применение капилляров поставило вопрос о возможности их применения и в манипуляторе. Жесткость капилляров диаметром на конце в 100 нм сравнима с жесткостью зондов из W, и ожидаемо, что работа системы обратной связи в гибридном режиме при применении таких капилляров будет достаточно устойчивой. Проблема устойчивости в работе системы обратной связи АСМ, возникающая в случае использования излишне жестких зондов, связана с тем, что наклон зависимости амплитуды колебаний от высоты положения острия оказывается настолько большим, что даже при использовании минимального коэффициента усиления интегральной компоненты в системе обратной связи АСМ и дополнительного понижения добротности кварцевого резонатора не удается избавиться от эффекта самогенерации. В работе [24] была исследована возможность применения стеклянных капилляров с диаметром в 2 мкм с жесткостью $k \approx 400$ Н/м.

В данной работе было показано, что система обратной связи работает достаточно устойчиво и можно проводить сканирование стандартной калибровочной решетки TGZ2 (NT-MDT). Кроме того, было продемонстрировано, что АСМ работает действительно в гибридном режиме, а вертикальный относительно плоскости сканирования изгиб капилляра можно легко увидеть в оптический микроскоп. Дополнительно было показано, что при увеличении силы, с которой капилляр прижат к поверхности образца, можно наблюдать и горизонтальный изгиб капилляра при боковом смещении головки сканирования. Очевидно, что никакого горизонтального изгиба капилляра в случае работы АСМ в полуконтактном режиме возникнуть не может.

Отдельный вопрос, который был затронут в работе [24], заключался в демонстрации достаточно высокой чувствительности гибридного режима даже в случае применения капилляров с большой жесткостью. В работе удалось задетектировать момент касания поверхности капли жидкости и продемонстрировать возможность перемещения данной капли по поверхности подложки без касания капилляром поверхности самой подложки.

Кроме того, было показано, что в случае если капилляр наполнен жидкостью, то можно размещать капли на поверхности подложки дозированно, характерный объем капель можно менять от 200 фл (соответствует времени касания капилляром поверхности менее 1 с) до 400 фл (время касания капилляром поверхности – 10 с) [24]. В дальнейшем каплями можно оперировать, объединяя их и перемещая по поверхности подложки, применяя стандартные зонды, изготовленные из вольфрама [8].

## ПРИМЕНЕНИЕ ЖЕСТКИХ САПФИРОВЫХ ЗОНДОВ В КАЧЕСТВЕ ОСТРИЯ В ГИБРИДНОМ РЕЖИМЕ МАНИПУЛЯТОРА АТОМНО-СИЛОВОГО МИКРОСКОПА

В предыдущих частях настоящего обзора успешная работа АСМ-манипулятора в гибридном режиме базирована на возможности изогнуть кончик зонда. Оказалось, что даже зонд с жесткостью $k = 400$ Н/м можно успешно использовать в данном режиме. В этом разделе будет продемонстрировано, что в некоторых случаях есть возможность использования зондов практически с произвольно большим коэффициентом жесткости. Однако в этом случае для устойчивой работы системы обратной связи сама исследуемая поверхность должна быть упругой. Было экспериментально проверено, что поверхность растительной клетки, например, чешуйка лука, обладает подходящими механическими свойствами. На рис. 3 представлено изображение жесткого сапфирового стержня с радиусом скругления 20 мкм, прижатого к поверхности чешуйки лука. Силу нажатия контролировали системой обратной связи АСМ. Результат сканирования рельефа поверхности данным зондом представлен на рис. 4.

Таким образом, можно констатировать, что используемый в манипуляторе гибридный режим АСМ может быть успешно применен для получения изображения рельефа биологических объектов в случае использования зондов любой жесткости. Это особенно важно, поскольку поверхностная мембрана растительных клеток достаточно твердая и проникнуть внутрь нее с целью проведения

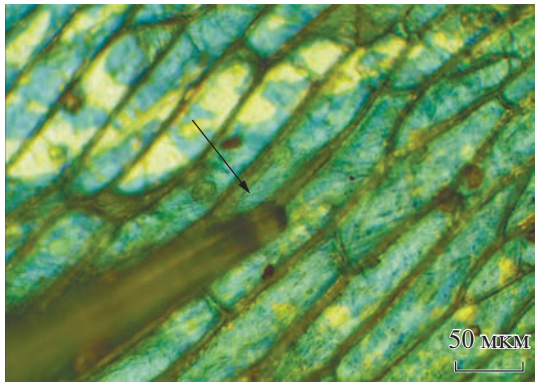


**Рис. 3.** Оптическое изображение грубого сапфирового зонда с диаметром скругления на конце 20 мкм (отмечен стрелкой), острие лежит на поверхности клетки чешуйки лука. Постоянная сила прижима зонда к поверхности поддерживается системой обратной связи АСМ.

**Рис. 4.** Результат сканирования рельефа поверхности клетки чешуйки лука грубым сапфировым острием.

внутриклеточных манипуляций стандартной иглой из вольфрама часто не представляется возможным. То есть работа по проникновению внутрь растительной клетки должна быть выполнена с использованием специального инструмента, изготовленного, например, из сапфира. Как было отмечено выше, коэффициент жесткости изготовленного инструмента при использовании гибридного режима в данном случае значения не имеет.

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В настоящем обзоре представлены последние достижения в области расширения возможностей двухзондового АСМ-манипулятора. Показано, как успешное применение данного манипулятора при измерении сил адгезии и жесткости зондов из W, так и в области нано- и микрофлюидики. Продемонстрирована возможность успешного применения зондов различной жесткости, в том числе стеклянных капилляров диаметром порядка 1 мкм и зондов, изготовленных из сапфира.

## БЛАГОДАРНОСТИ

Данная работа была выполнена в рамках Государственного задания ИФТТ РАН.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Yamahata C. et al.* // J. Microelectromech. Syst. 2008. V. 17. P. 623.
2. *Flohr K. et al.* // Rev. Sci. Instrum. 2011. V. 82. P. 113705.
3. *Tsunemi E., Kobayashi K., Matsushige K., Yamada H.* // Rev. Sci. Instrum. 2011. V. 82. P. 033708. https://www.doi.org/10.1063/1.3534830
4. *Cherepanov V., Zubkov E., Junker H., Korte S., Blab M., Coenen P., Voigtl B.* // Rev. Sci. Instrum. 2012. V. 83. P. 033707. https://www.doi.org/10.1063/1.3694990
5. Unisoku USM-1400-4P SNOM-SPM system (Unisoku), QuadraProbe (RHK Technology), LT NANOPROBE (Scienta Omicron).
6. *Giessibl F.J.* // Appl. Phys. Lett. 1998. V. 73. P. 3956. https://doi.org/10.1063/1.122948
7. *Zhukov A.A., Stolyarov V.S., Kononenko O.V.* // Rev. Sci. Instrum. 2017. V. 88. P. 063701. https://www.doi.org/10.1063/1.4985006
8. *Fang A., Dujardin E., Ondarçuhu Th.* // Nano Lett. 2006. V. 6. P. 2368.
9. *Zhukov A.A.* // Instrum. Experimental Tech. 2019. V. 62. P. 416. https://www.doi.org/10.1134/S0020441219030278
10. *O'Connell C.D., Higgins M.J., Marusic D., Moulton S.E., Wallace G.G.* // Langmuir. 2014. V. 30. P. 2712. https://www.doi.org/10.1021/la402936z
11. *Hansma P.K., Drake B., Marti O., Gould S.A., Prater C.B.* // Science. 1989. V. 243. P. 641. https://www.doi.org/10.1126/science.2464851
12. *Zhou L., Gong Y., Hou J., Baker L.A.* // Anal. Chem. 2017. V. 89. P. 13603. https://www.doi.org/10.1021/acs.analchem.7b04139
13. *Rheinlaender J., Geisse N.A., Proksch R., Schäffer T.E.* // Langmuir. 2011. V. 27. P. 697. https://www.doi.org/10.1021/la103275y
14. *Gesper A., Hagemann Ph., Happel P.* // Nanoscale. 2019. V. 9. P. 14172. https://www.doi.org/10.1039/C7NR04306F
15. *Page A., Kang M., Armitstead A., Perry D., Unwin P.R.* // Anal. Chem. 2017. V. 89. P. 3021. https://www.doi.org/10.1021/acs.analchem.6b04629
16. *Waghule T., Singhvi G., Dubey S.K., Pandey M.M., Gupta G., Singh M., Dua K.* // Biomed. Pharmacotherapy. 2019. V. 109. P. 1249. https://www.doi.org/10.1016/j.biopha.2018.10.078
17. *Hore M.J.A., Ye X., Ford J., Gao Y., Fei J., Wu Q., Rowan S.J., Composto R.J., Murray Ch.B., Hammouda B.* // Nano Lett. 2015. V. 15. P. 1374. https://www.doi.org/10.1021/acs.nanolett.5b03088
18. *De Kretzer D, Dennis P, Hudson B, Leeton J, Lopata A, Outch K, Talbot J, Wood C.* // Lancet. 1973. V. 302. P. 728. https://www.doi.org/10.1016/S0140-6736(73)92553-1
19. *Sanchez D., Johnson N., Li Ch., Novak P., Rheinlaender J., Zhang Y., Anand U., Anand P., Gorelik J., Frolenkov G.I., Benham Ch., Lab M., Ostanin V.P., Schäffer T.E., Klenerman D., Korchev Y.E.* // Biophys. J. 2008. V. 95. P. 3017. https://www.doi.org/10.1529/biophysj.108.129551

20. *Wei Ch., Bard A.J., Feldberg S.W.* // Anal. Chem. 1997. V. 69. P. 4627. https://www.doi.org/10.1021/ac970551g
21. *Chen Ch.-Ch., Derylo M.A., Baker L.A.* // Anal. Chem. 2009. V. 81. P. 4742. https://www.doi.org/10.1021/ac900065p
22. *Frederix P.L.T.M., Bosshart P.D., Akiyama T., Chami M., Gullo M.R., Blackstock J.J., Dooleweerdt K., de Rooij N.F., Staufer U., Engel A.* // Nanotechnol. 2008. V. 19. P. 384004. https://www.doi.org/10.1088/0957-4484/19/38/384004
23. *Macpherson J.V., Jones C.E., Barker A.L., Unwin P.R.* // Anal. Chem. 2002. V. 74. P. 1841. https://www.doi.org/10.1021/ac0157472
24. *Zhukov A.A., Romanova S.G.* // Instrum. Experimental Tech. 2022. V. 65. P. 514. https://www.doi.org/10.1134/S002044122204008X

# The Extension of Field of Applications of Atomic-Force Microscope Hybrid Mode of Two-Probes Nano-Manipulator

**A. A. Zhukov***

*Institute of Solid State Physics RAS, Chernogolovka, 142432 Russia*

**e-mail: azhukov@issp.ac.ru*

The review of extension of fields of applications of hybrid mode of atomic-force microscope. This mode is the main for two-probes AFM-manipulator. Various methods of upgrades of the feed back system of the AFM whose essentially improve the signal-to-noise ratio in topography mapping are presented. Additionally, successful application of wide range of probes the flexible ones such as standard W probes and glass capillaries as well as rigid probes (sapphire probes with probe tips diameters of dozens of microns) are presented as well. We show the examples of wide application of such mode in measurements of conductivity and adhesion forces of the nanowhiskers on the Si substrate. Beside this, the application of hybrid mode in micro- and nanofluidics such as formation of drops of defined volumes, replacement of drops, their devision and merging are presented. The example of different techniques of manipulations are presented. The possibility of nanowhiskers replacement with liquid flow formed by AFM-probe, i.e. avoiding the direct tip-to-nanowhisker contact, are shown.

**Keywords:** scanning probe microscopy, nanowhiskers, microfluidics.

УДК 681.2.084:681.5:534.134

# О ПРОСТРАНСТВЕННОМ РАЗРЕШЕНИИ ПЬЕЗОРЕЗОНАНСНОГО ЗОНДОВОГО ДАТЧИКА С ВОЛЬФРАМОВОЙ ИГЛОЙ

**© 2023 г. О. М. Горбенко[a], *, М. В. Жуков[a], **, С. Ю. Лукашенко[a], С. В. Пичахчи[a], И. Д. Сапожников[a], М. Л. Фельштын[a], А. О. Голубок[a], *****

[a] *ИАП РАН, Санкт-Петербург, 198095 Россия*

**e-mail: gorolga64@gmail.com*

***e-mail: cloudjyk@yandex.ru*

****e-mail: aogolubok@mail.ru*

Поступила в редакцию 26.06.2022 г.
После доработки 20.08.2022 г.
Принята к публикации 20.08.2022 г.

В сканирующей зондовой микроскопии используют зондовые датчики силового взаимодействия различных типов. Наиболее широко распространены кремниевые кантилеверы с оптической регистрацией их отклонения под действием силового взаимодействия с исследуемой поверхностью. Также известны самосогласованные (“self-sensing”) зондовые датчики на основе кремниевого кантилевера или пьезотрубки, использующие пьезорезистивный или пьезорезонансный принципы измерения их прогиба соответственно. В настоящей работе исследованы характеристики самосогласованного пьезорезонансного зондового датчика. Датчик представляет собой пьезотрубку, на свободном конце которой закреплена игла из W длиной несколько мм. Принято считать, что пространственное разрешение зондовых датчиков в сканирующей зондовой микроскопии обусловлено радиусом закругления наноиглы. Однако в колебательных режимах работы “пятно” контакта зонда с образцом может размываться, ухудшая пространственное разрешение. В настоящей работе методом конечных элементов рассчитаны амплитудно-частотная характеристика системы “пьезотрубка – игла” и размер эффективного пятна контакта зонда с образцом в условиях реального эксперимента. Проведено сравнение результатов расчета с экспериментальной амплитудно-частотной характеристикой.

**Ключевые слова:** сканирующая зондовая микроскопия, пьезорезонансный датчик, самосогласованный датчик, пространственное разрешение зонда.

**DOI:** 10.31857/S1028096023050060, **EDN:** KRPFZE

## ВВЕДЕНИЕ

Традиционным датчиком локальной силы в сканирующей зондовой микроскопии (СЗМ) [1, 2] является кремниевый кантилевер [3], в котором силу взаимодействия зонда с образцом детектируют по отклонению лазерного луча, отраженного от изогнутой поверхности кантилевера. Также в некоторых случаях используют самосогласованные (“self-sensing”) датчики, не требующие оптической схемы измерения и преобразующие силовое взаимодействие зонда с образцом непосредственно в электрический сигнал [4]. Например, в [5] описан самосогласованный датчик в виде кварцевого камертона, на одном из плеч которого закреплена игла из W, в [6] – так называемый, Акияма-датчик, в котором к кварцевому резонатору прикреплен кантилевер из Si, в [7] – кремниевый кантилевер с тензорезистором, а в [8] – датчик в виде пьезокерамической трубки с прикрепленной к ней застроенной проволокой из W. В настоящее время для детального понимания поведения электромеханических систем, в том числе, таких как зондовые датчики и пьезосканеры или пьезодвижители СЗМ, широко применяют математическое моделирование с использованием метода конечных элементов. Например, в [9–11] методом конечных элементов исследовали классический кремниевый кантилевер с оптической схемой регистрации его изгиба, а в [12] оптимизировали линейный пьезоэлектрический мотор СЗМ. В настоящей работе методом конечных элементов исследовано поведение зондового датчика, предложенного в [8]. В таком датчике одна половина пьезотрубки работает как вибратор, раскачивающий трубку с иглой из W на резонансной частоте. Вторая половина пьезотрубки является пьезодатчиком, напряжение на котором возникает вследствие прямого пьезоэффекта [13] и обусловлено амплитудой колебаний трубки, за-

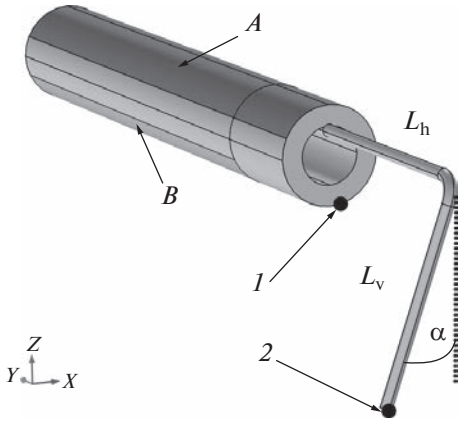


**Рис. 1.** Модель пьезорезонансного зондового датчика. Расчеты АЧХ датчика выполняли в точке *1*, для анализа пространственного разрешения датчика выполняли расчеты в точке *2*.

висящей, в свою очередь, от силового взаимодействия иглы с поверхностью образца. В реальных конструкциях в колебательном резонансном измерительном режиме вершина иглы может колебаться как перпендикулярно, так и вдоль поверхности образца, результатом чего является размывание “пятна” контакта зонда с образцом. Следует отметить, что подобное размытие является следствием конструкционных особенностей рассматриваемого датчика и не возникает при использовании кантилеверов из Si. В настоящей работе построена модель реального самосогласованного пьезорезонансного датчика с иглой из W, описанного в [8], и исследовано влияние геометрических параметров иглы на резонансные характеристики и чувствительность датчика.

## ОПИСАНИЕ МОДЕЛИ

Датчик представляет собой трубку из пьезокерамического материала ЦТС-19 [14], длиной 8 мм с внешним диаметром 1.2 мм и толщиной стенки 0.25 мм, в которой закреплен зонд (игла) из согнутой под углом 90° вольфрамовой проволоки диаметром $D$ = 0.15 или 0.3 мм, с длинами горизонтального ($L_h$) и вертикального ($L_v$) участков (плеч) (рис. 1) в диапазоне, соответственно, (0.5–5.0) и (1–6) мм.

Указанные параметры были заложены в расчетную модель, построенную при помощи программного пакета COMSOL. Задний торец трубки был жестко закреплен, а вольфрамовая игла жестко закреплена на внутренней поверхности у переднего торца трубки (рис. 1). В качестве параметров пьезокерамики ЦТС-19 были взяты имеющиеся во встроенной библиотеке COMSOL параметры пьезокерамики PZT-5 [15], как наиболее близкой по свойствам [16]. Датчик имел два электрода, расположенные на внешней поверхности трубки и подсоединенные к электрической цепи. Внутренняя поверхность трубки заземлена. К верхнему электроду (*A* на рис. 1) подключен генератор синусоидального напряжения в диапазоне частот 5–15 кГц. Амплитуда напряжения генератора соответствовала экспериментально заданному и составила 20 мВ. Напряжение, возникающее вследствие прямого пьезоэффекта в процессе колебаний трубки с зондом, измеряли на нижнем электроде (*B* на рис. 1).

При расчетах решали мультифизическую задачу с использованием следующих модулей COMSOL: Solid Mechanics, предназначенного для анализа широкого спектра структурно-механических моделей; Electrostatics, позволяющего выполнять расчет электрических полей в моделях, состоящих из различных материалов; Electrical Circuit, обеспечивающего возможность подключения модели к электрической цепи. Модули Solid Mechanics и Electrostatics объединены при помощи мультифизической связки Piezoelectric Effect [17]. В расчетах варьируемыми являлись следующие параметры модели: расстояние $L_h$, на которое зонд выдвинут из трубки; длина зонда по вертикали $L_v$; угол поворота зонда $\alpha$; диаметр проволоки $D$ (рис. 1).

В модели рассмотрены вынужденные колебания датчика при условии, что зонд находится вдали от поверхности образца. Механические потери в модели заданы в форме рэлеевского демпфирования [18–20] с коэффициентами, определенными на основе экспериментальных данных: добротность резонансного пика ($Q$-фактор) на частоте $f_0$ = 9 кГц равна 50.

Решение задачи при помощи пакета COMSOL позволяет построить амплитудно-частотную характеристику (АЧХ) датчика для различных точек модели. Поскольку резонансные характеристики датчика измеряли через прямой пьезоэффект на пьезотрубке, то для расчета АЧХ выбирали точку на пьезотрубке, имеющую максимальное отклонение (точка *1* на рис. 1), в то время как для анализа пространственного разрешения датчика вычисляли отклонения вершины вольфрамовой иглы (точка *2* на рис. 1).

## РЕЗУЛЬТАТЫ

Сравнение расчетных АЧХ с экспериментальной резонансной кривой (рис. 2а) показало, что потери в модели заданы адекватно экспериментальным данным, и что расчетная резонансная частота близка к измеренной экспериментально.

Кроме того, адекватность построенной модели подтверждается характером экспериментальной кривой подвода (рис. 2б). Из графика зависимости амплитуды колебаний датчика от расстояния

до поверхности образца, измеренной в процессе проведения эксперимента с реальным датчиком, видно, что падение величины амплитуды от максимального значения при вынужденных колебаниях (принятого за единицу) до минимального значения происходит на расстоянии приблизительно 15 нм. Эта величина находится в пределах диапазона рассчитанных амплитуд колебаний датчика, представленных далее.

Были рассчитаны АЧХ датчиков в точке *1* (рис. 1) с различными длинами горизонтального ($L_h$) (рис. 3а) и вертикального ($L_v$) (рис. 3б) плеч зонда. Для сравнения рассчитаны и приведены графики АЧХ трубки датчика без зонда (пунктирная линия). Из сравнения полученных кривых можно заключить, что зонд влияет как на форму АЧХ датчика, так и на амплитуду его колебаний. При некоторых размерах зонда на АЧХ в заданном диапазоне частот появляются дополнительные резонансные пики, что, вообще говоря, может ухудшать пространственное разрешение метода.

Для того чтобы оценить влияние параметров зонда на размер пятна контакта с образцом, были рассчитаны АЧХ в точке *2* (вершина зонда). В качестве меры оценки влияния колебаний на пространственное разрешение зонда принята величина радиуса сферы закругления зонда $R_{Tip} \sim 50$ нм. Расчеты показали, что в рабочем режиме (на резонансной частоте всей конструкции) вершина зонда (точка *2*) с любыми параметрами имеет наибольшую амплитуду колебаний, направленных вдоль оси трубки датчика (ось *Y*). Это продемонстрировано на примере набора зондов с различным размером горизонтальной части $L_h = 0.5$; 1; 2; 3; 4; 5 мм, при фиксированной длине $L_v = 3$ мм, $\alpha = 0°$ (рис. 3в). При отсутствии поворота зонда вокруг оси *Y* колебаний в направлении оси *X* нет, однако амплитуда колебаний вершины зонда вдоль оси трубки датчика на основной резонансной частоте датчика меняется в пределах 90–128 нм, что существенно превышает величину $R_{Tip} \sim 50$ нм.

Колебания в горизонтальной плоскости влияют на разрешение изображений, получаемых при сканировании в прерывистом (полуконтактном) режиме и приводят к уменьшению точности измерений высоты рельефа (координата *Z*). Если амплитуда колебаний вершины зонда в плоскости образца меньше, чем характерный шаг профиля поверхности, то пространственное разрешение метода будет определяться характерным радиусом закругления наноиглы. Однако разрешение будет ухудшаться с увеличением шероховатости поверхности образца, если характерный шаг профиля поверхности будет меньше амплитуды паразитных колебаний зонда вдоль направления *X* или *Y*. Действительно, в случае гладкой поверхности колебания вдоль направлений *X* или *Y* приведут лишь к сдвигу точки столкновения зонда с поверхностью образца. Если же на исследуемой поверхности имеется рельеф с характерным шагом профиля, меньшим, чем амплитуда паразитных колебаний, то при сканировании поверхности точка столкновения зонда с поверхностью может сместиться в плоскости образца на величину, превышающую шаг сканирования. В результате возникает размывание точки контакта зонда с поверхностью образца, что приводит к искажению реального рельефа на СЗМ-изображении (рис. 4).

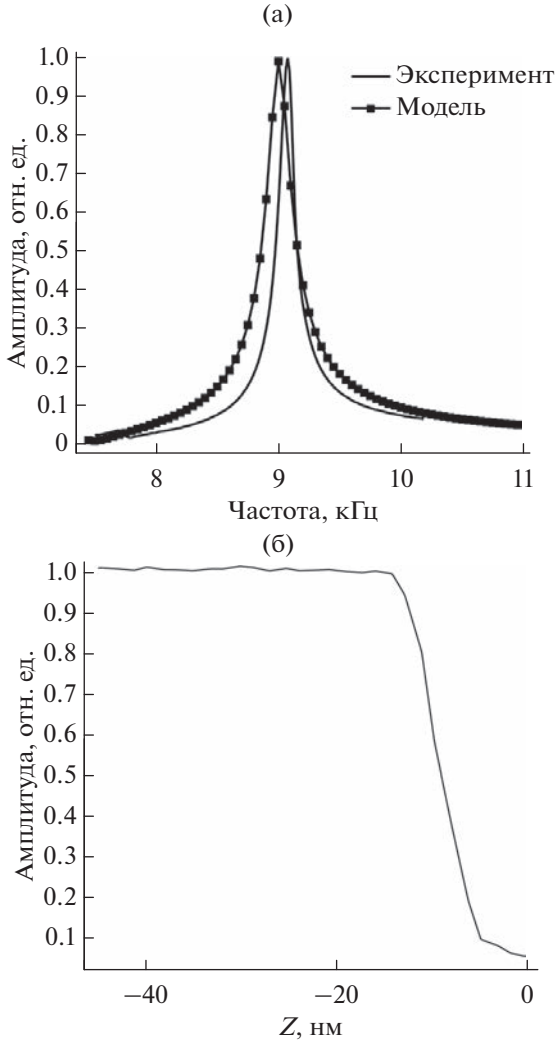


**Рис. 2.** Сравнение экспериментальной и расчетной резонансных кривых пьезодатчика (а) и экспериментальная кривая подвода (б).

Исследование зависимости АЧХ датчика от угла поворота зонда $\alpha$ показало, что при наличии поворота зонда амплитуда колебаний вершины зонда вдоль оси *Y* уменьшается, но появляются колебания вдоль направления *X*, перпендикулярного оси трубки (рис. 3г). Для того, чтобы определить положение резонансных пиков, на рис. 3г

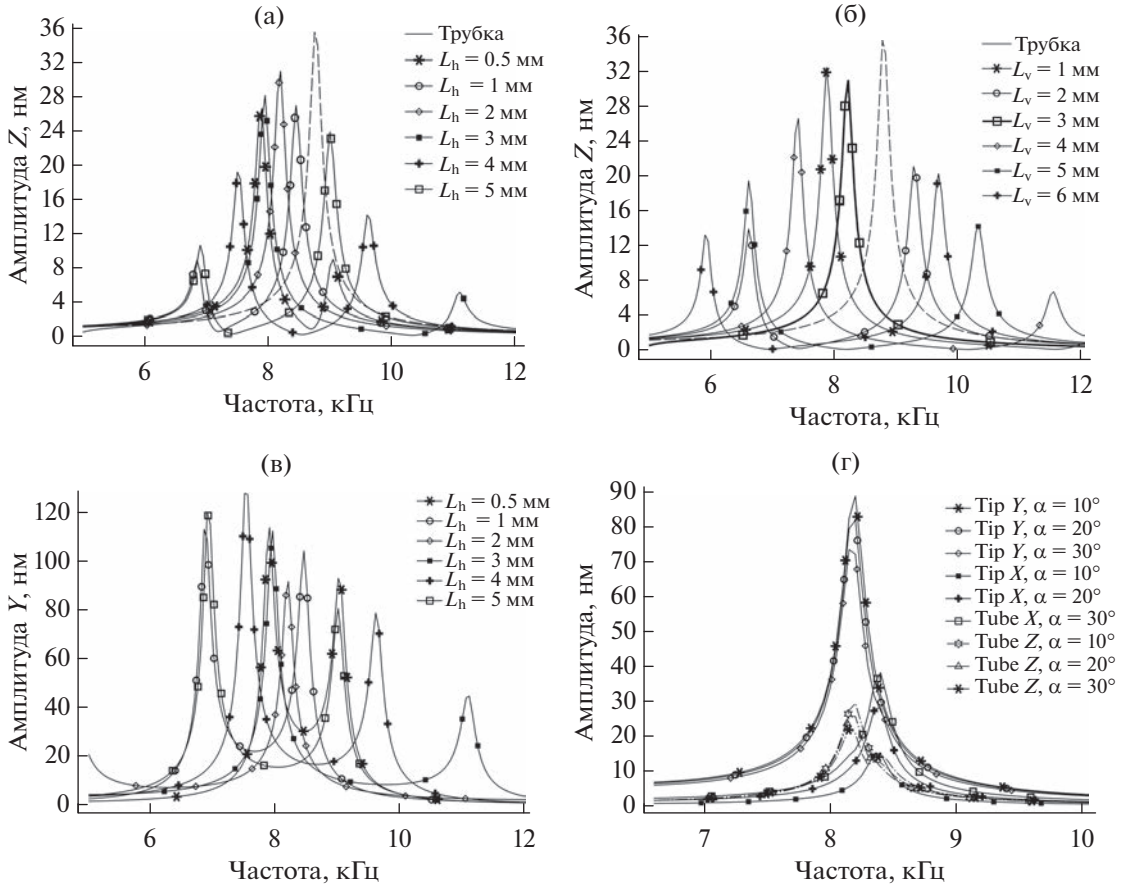


**Рис. 3.** Измеренные зависимости АЧХ датчика от геометрических параметров зонда (диаметр проволоки $D = 0.15$ мм): при колебаниях вдоль оси $Z$ в точке *1* (на конце трубки) при различных величинах $L_v$, $L_h = 2$ мм, $\alpha = 0°$ (а) и при различных величинах $L_h$, $L_v = 3$ мм, $\alpha = 0°$ (б); при колебаниях вдоль оси $Y$ в точке *2* при различных величинах $L_h$, $L_v = 3$ мм, $\alpha = 0°$ (в); при колебаниях вдоль оси $Z$ (Tube $Z$) и вдоль осей $X$, $Y$ (Tip $X$, Tip $Y$) при различных величинах угла наклона зонда $\alpha = 10°$, 20° и 30°, $L_h = 2$ мм, $L_v = 3$ мм (г).

приведены АЧХ датчиков в точке *1* (на конце пьезокерамической трубки). Видно, что резонансные частоты всего датчика и колебаний вершины зонда в точке *2* в направлении $Y$ совпадают, а резонансные частоты колебаний в точке *2* в направлении оси $X$ смещены. Это означает, что колебания вершины зонда на резонансной частоте датчика в направлении $Y$ имеют максимальную амплитуду, а вдоль оси $X$ – уменьшенную. Для датчика с размерами плеч $L_h = 2$ мм, $L_v = 3$ мм при повороте на 30° амплитуда колебаний вершины зонда вдоль оси $Y$ уменьшилась с 92 до 74 нм, однако и эта величина превышает $R_{Tip} \sim 50$ нм.

Для того, чтобы проиллюстрировать чувствительность датчика, выполнено исследование колебаний вершины зонда в зависимости от времени. На рис. 5а приведена временна́я диаграмма колебаний вершины зонда датчика на резонансной частоте $f_0 = 8.2$ кГц ($L_h = 2$ мм, $L_v = 3$ мм, $\alpha = 20°$). Примеры изображений траекторий движения вершины зонда (точка *2*) во времени в плоскости $XY$ приведены на рис. 5б. Слева показана траектория для зонда с величиной горизонтального плеча $L_h = 4$ мм, $L_v = 3$ мм, $\alpha = 0°$, имеющего, как показано на рис. 3в, наибольшую амплитуду колебаний вдоль оси $Y$, равную 128 нм. Справа – траектория для зонда с параметрами $L_h = 2$ мм, $L_v = 3$ мм, $\alpha = 20°$, амплитуды колебаний которого вдоль оси $Y$ составляет 84 нм, а вдоль оси $X$ – 22 нм. Для оценки влияния колебаний вершины зонда на чувствительность датчика светло-серым цветом показана область радиусом $R_{Tip} \sim 50$ нм, соответствующим характерному значению радиуса закругления наноиглы. Сравнение амплитуд с радиусом $R_{Tip}$ колебаний в точке *2* датчиков с приведенными выше параметрами позволяет сделать вывод о том, что колебания вершины зонда вносят существенный вклад в размер пятна контакта, особенно в направлении, совпадающем с осью трубки датчика (ось $Y$).

Одним из возможных способов уменьшить размер “пятна” контакта является использование

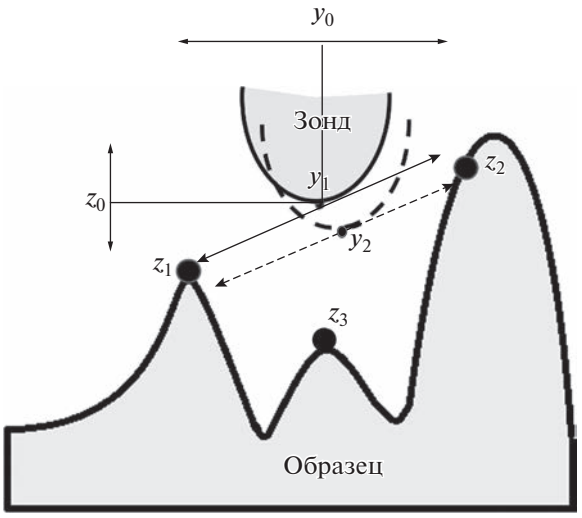


**Рис. 4.** Иллюстрация ухудшения чувствительности саморегулирующегося пьезорезонансного зондового датчика вследствие паразитных колебаний вершины зонда вдоль оси *Y*. Здесь $y_1$, $y_2$ – равновесные положения вершины зонда в разных точках поверхности в процессе сканирования вдоль оси *Y*; $y_0$ – амплитуда паразитных колебаний зонда; $z_0$ – амплитуда колебаний зонда вдоль координаты *Z* в полуконтактном режиме; $z_1$ – точка столкновения зонда, колеблющегося около равновесного положения $y_1$, с поверхностью образца; $z_2$ – точка столкновения зонда, колеблющегося около равновесного положения $y_2$, с поверхностью образца. Наклонными стрелками показана траектория перемещения зонда в полуконтактном режиме в присутствии паразитных колебаний. Наличие паразитных колебаний вершины зонда вдоль оси *Y* препятствует попаданию вершины зонда в точку $z_3$, что приводит к ухудшению чувствительности датчика.

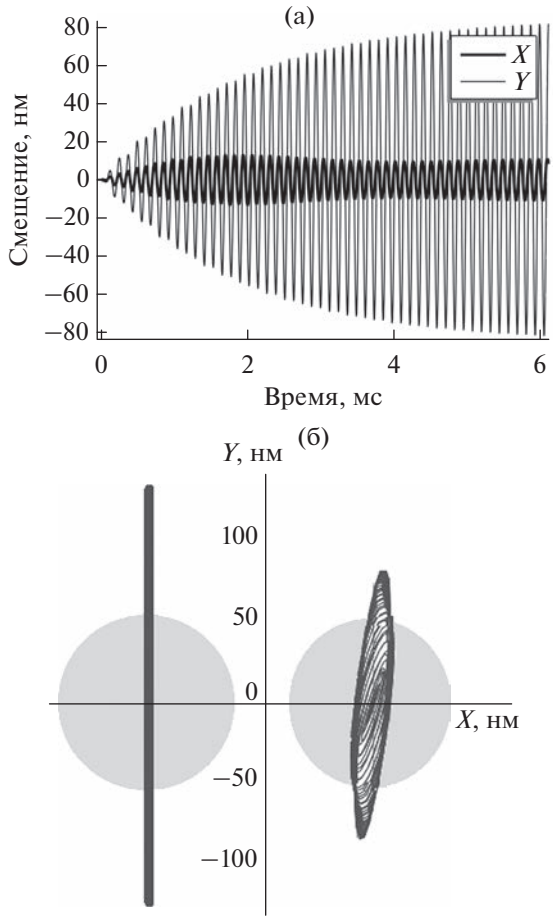


**Рис. 5.** Временна́я диаграмма колебаний датчика с параметрами $L_h = 2$ мм, $L_v = 3$ мм, $\alpha = 20°$ в точке *2* вдоль осей *X* и *Y* (а) и отображение траекторий движения вершины зондов с параметрами $L_h = 4$ мм, $L_v = 3$ мм, $\alpha = 0°$ (слева) и $L_h = 2$ мм, $L_v = 3$ мм, $\alpha = 20°$ (справа) во времени в плоскости *XY* (б); светло-серым цветом показана проекция сферы закругления острия зонда на плоскость *XY*.

зонда из более толстой проволоки. Чтобы оценить эффект, который может дать использование зонда из более толстой проволоки, был проведен модельный эксперимент с проволокой толщиной 0.3 мм в качестве материала зонда. В результате вычислений получено, что амплитуда движения вершины зонда из проволоки толщиной $D = 0.3$ мм сократилась приблизительно в 4 раза по сравнению с зондом из проволоки толщиной $D = 0.15$ мм. На рис. 6а показаны амплитуды колебаний вершины зонда в направлении оси *Y* для зондов, изготовленных из проволоки различной толщины. Для зондов из каждого типа проволоки проведен расчет на одинаковом наборе величин $L_h = 0.5$; 1; 2; 3; 4; 5 мм, $L_v = 3$ мм. Видно, что зонды из более толстой проволоки, независимо от длины горизонтального плеча ($L_h$), совершают колебания меньшей амплитуды, чем зонды из тонкой проволоки. На рис. 6б приведено изображение траектории движения вершины зонда во времени в горизонтальной плоскости (темно-серым) для зонда с параметрами $L_h = 2$ мм, $L_v = 3$ мм, $\alpha = 20°$. Светло-серым цветом показана область радиусом $R_{Tip} \sim$ ~ 50 нм. Размах колебаний вершины зонда в этом случае меньше, чем диаметр закругления зонда, что позволяет утверждать, что при использовании более толстой проволоки эффективный размер пятна контакта обусловлен, в основном, радиусом закругления иглы.

## ВЫВОДЫ

При работе сканирующего зондового микроскопа с самосогласованным пьезорезонансным зондовым датчиком в виде пьезотрубки с прикрепленным к ее внутренней поверхности зондом из заостренной вольфрамовой проволоки возникают резонансные колебания вершины зонда вдоль оси трубки. Расчеты показывают, что амплитуда таких колебаний может превышать

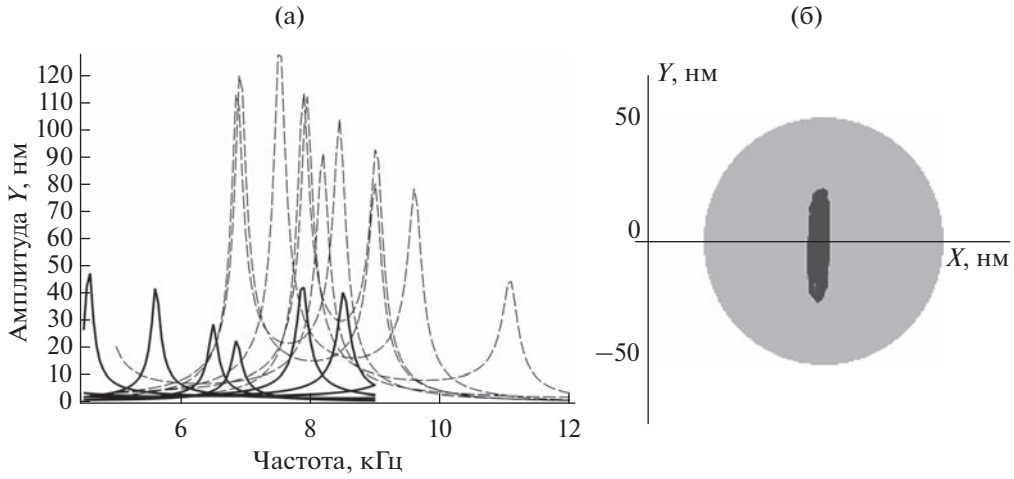


**Рис. 6.** АЧХ колебаний вершины зондов (в точке *2*) с различными величиной горизонтального плеча $L_h$ и диаметром проволоки $D = 0.15$ мм (пунктирная линия), $D = 0.30$ мм (сплошная линия) (а) и изображение траектории движения вершины зонда с диаметром проволоки $D = 0.3$ мм, $L_h = 2$ мм, $L_v = 3$ мм, $\alpha = 20°$ во времени в плоскости $XY$ (б).

~100 нм, что в два раза больше характерной величины радиуса закругления иглы. Также показано, что, как правило, происходящий на практике поворот зонда вокруг оси трубки приводит к появлению колебаний вершины зонда в направлении, перпендикулярном к оси трубки. Возникающие колебания вершины зонда в плоскости образца будут размывать пятно контакта зонда с образцом, ухудшая чувствительность сканирующего зондового микроскопа в прерывистом (полуконтактном) режиме измерений. Для уменьшения паразитных колебаний вершины зонда следует увеличивать диаметр проволоки и устанавливать зонд в датчике с отклонением от вертикального положения на угол порядка 20°. Так, например, при увеличении диаметра проволоки из W с 0.15 до 0.30 мм амплитуда колебаний вершины зонда уменьшается в четыре раза и при $L_h = 2$ мм, $L_v = 3$ мм, $\alpha = 20°$ достигает величины ~20 нм, что в два раза меньше характерной величины радиуса закругления иглы из W. Таким образом, с помощью численного эксперимента получены геометрические параметры для зонда из W самосогласованного пьезорезонансного зондового датчика, при которых колебания вершины зонда в плоскости образца, возникающие в полуконтактном режиме измерений, не будут приводить к ухудшению пространственного разрешения метода.

## БЛАГОДАРНОСТИ

Работа выполнена при поддержке государственного задания № FFZM-2022-0008 (тема № 22 542,089) Министерства образования и науки Российской Федерации.

**Конфликт интересов:** авторы заявляют, что конфликта интересов нет.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Binnig G., Quate C.F., Gerber Ch.* // Phys. Rev. Lett. 1986. V. 56. P. 930. https://www.doi.org/10.1103/PhysRevLett.56.930
2. *Wiesendanger R.* Scanning Probe Microscopy and Spectroscopy. Cambrige University Press, 1994. 637 p.
3. *Миронов В.Л.* Основы сканирующей зондовой микроскопии. Москва: Техносфера, 2009. 143 с.
4. *Sharapov V.* Piezoceramic Sensors. Springer Verlag, 2011. 498 p.
5. *Giessibl F.J.* // Appl. Phys. Lett. 1998. V. 73. P. 3956. https://www.doi.org/10.1063/1.122948
6. *Akiyama T., Staufer U., de Rooij N.F.* // Appl. Surf. Sci. 2003. V. 210. P. 18. https://www.doi.org/10.1016/S0169-4332(02)01471-X
7. *Bausells J.* // Microelectronic Engineering. 2015. V. 145. P. 9. https://www.doi.org/10.1016/j.mee.2015.02.010
8. *Васильев А.А., Керпелева С.Ю, Котов В.В., Сапожников И.Д., Голубок А.О.* // Научное приборостроение. 2005. Т. 15. С. 62.
9. *Быков А.В.* // Известия ЮФУ. Технические науки. 2015. Т. 9. № 170. С. 145.
10. *Малохатко С.В., Гусев Е.Ю., Быков А.В., Житяева Ю.Ю.* // Известия ЮФУ, Технические науки. 2017. Т. 6. С. 234.
11. *Yang, M.-H.* // Master Thesis, Department of Mechanical and Mechatronic Engineering, National Taiwan Ocean University: Keelung. 2007.
12. *Гальченко В.Я., Филимонов С.А., Батраченко А.В., Филимонова Н.В.* // Журн. нано- и электронной физики. 2018. Т. 10. С. 04025-1.
13. *Барфут Дж.* Полярные диэлектрики и их применение. М.: Мир, 1981. 526 с.
14. *Яффе Б., Кук У., Яффе Г.* Пьезоэлектрическая керамика. М.: Мир, 1974. 288 с.
15. *Ransley J.* Пьезоэлектрические материалы: разбор стандартов. Блог COMSOL https://www.comsol.ru/

blogs/piezoelectric-materials-understanding-standards/. Cited 02 October 2014.
16. *Черепанцев А.С., Салтыков В.А.* // Приборы и техника эксперимента. 2020. Т. 1. С. 130.
17. COMSOL Documentation. https://doc.comsol.com. Cited 02 October 2014.
18. *Meirovitch L.* Fundamentals of Vibration. McGraw-Hill Education, 2003. 806 p.
19. *Wilson E.L.* Static and Dynamic Analysis of Structures (4th ed.). Berkeley Computers and Structures Inc, 2002. 423 p.
20. *Соннерлинд Х.* Теория и механизмы демпфирования в механике конструкций. Блог COMSOL https://www.comsol.ru/blogs/damping-in-structural-dynamics-theory-and-sources/. Cited 14 March 2019.

# On the Spatial Resolution of a Piezoresonance Probe Sensor with a Wolfram Needle

**O. M. Gorbenko[1, *], M. V. Zhukov[1, **], S. Yu. Lukashenko[1], S. V. Pichahchi[1], I. D. Sapozhnikov[1], M. L. Felshtyn[1], A. O. Golubok[1, ***]**

*[1]IAI RAS, Saint-Petersburg, 198095 Russia*

**e-mail: gorolga64@gmail.com*

***e-mail: cloudjyk@yandex.ru*

****e-mail: aogolubok@mail.ru*

In scanning probe microscopy, the various types of force interaction probe sensors are used. Silicon cantilevers with optical registration of their deflection under the influence of force interaction with the surface under study are the most widespread. Also "self-sensing" probe sensors based on a silicon cantilever or piezo tubes using piezoresistive or piezoresonance principle for measuring their deflection, respectively, are known. In this work a "self-sensing" piezoresonance probe sensor was investigated. The sensor is a piezo tube, at the free end of which a W needle with a length of several millimeters is fixed. It is generally assumed that the spatial resolution of SPM probe sensors is due to the radius of the sphere at the apex of the needle tip. However, in the oscillatory modes of scanning probe microscopy operation the "spot" of the probe's contact with the sample can be blurred, impairing the spatial resolution. In this paper the amplitude-frequency characteristic of the piezo-tube – W needle system and the size of the effective contact spot of the probe with the sample were calculated by finite element method. The calculation results are compared with the experimental frequency response curve.

**Keywords:** scanning probe microscopy, piezoresonance probe, self-sencing probe, COMSOL modelling, spatial resolution.

УДК 53.01:53.043:53.091:53.097

# ОСОБЕННОСТИ ПОВЕДЕНИЯ КРИВОЙ ПОДВОДА СКАНИРУЮЩЕГО МИКРОСКОПА ИОННОЙ ПРОВОДИМОСТИ

**© 2023 г. С. Ю. Лукашенко[a], *, О. М. Горбенко[a], **, М. В. Жуков[a], С. В. Пичахчи[a], И. Д. Сапожников[a], М. Л. Фельштын[a], А. О. Голубок[a], *****

[a] *Институт аналитического приборостроения РАН, Санкт-Петербург, 198095 Россия*

**e-mail: stas.lukashenko@mail.ru*

***e-mail: gorolga64@gmail.com*

****e-mail: aogolubok@mail.ru*

Поступила в редакцию 26.07.2022 г.
После доработки 20.09.2022 г.
Принята к публикации 20.09.2022 г.

Работа сканирующего микроскопа ионной проводимости основана на предположении, что ионный ток $I(z)$, протекающий через наноапертуру зонда, выполненного в виде стеклянной нанопипетки, принимает максимальное значение $I = I_{sat}$ вдали (по сравнению с апертурой зонда) от исследуемого образца, погруженного в раствор электролита, и монотонно уменьшается при сближении зонда с поверхностью. Величину рабочего тока сканирующего микроскопа ионной проводимости обычно выбирают вблизи тока насыщения $I \sim 0.9I_{sat}$. Однако при определенных условиях монотонный характер кривой подвода $I(z)$ меняется, и при приближении нанопипетки к поверхности образца ионный ток увеличивается, проходит через максимальное значение и уменьшается при дальнейшем сближении зонда с поверхностью (“пик-эффект”). Очевидно, что “пик-эффект” может приводить к сбою в работе следящей системы сканирующего микроскопа ионной проводимости и шумам на получаемых изображениях. В работе экспериментально исследовалось появление пика на кривой подвода. Проведено сравнение экспериментальной кривой подвода с теоретическим расчетом, выполненным методом конечных элементов, зонд вблизи плоской поверхности образца рассматривали как микрофлюидную систему в виде Т-образного канала с симметрией относительно поворота вокруг оси пипетки.

**Ключевые слова:** сканирующая микроскопия ионной проводимости, нанопипетка, поверхностный заряд, полимеры, кривая подвода, микрофлюидная система.

**DOI:** 10.31857/S1028096023050102, **EDN:** KVIJJZ

## ВВЕДЕНИЕ

Пол Хансма заменил зонд в сканирующем туннельном микроскопе в виде острой металлической иглы на зонд, изготовленный из заостренного стеклянного капилляра (рис. 1), и поместил капилляр и образец в раствор электролита, оставив практически неизменной общую схему прибора и алгоритм измерений. Новый метод получил название сканирующей микроскопии ионной проводимости (СМИП) [1]. Интерес к СМИП устойчиво увеличивается с каждым годом в связи с открывающимися новыми возможностями при визуализации и изучении с высоким пространственным разрешением живых клеток [2–4], при исследовании локальных электрохимических реакций [5], проведении микро- и наноразмерной модификации поверхности [6, 7]. Для удобства измерений, как правило, СМИП сочетают с оптической микроскопией, а также применяют сочетание СМИП с атомно-силовой микроскопией [8, 9]. При использовании СМИП образец размещают на дне чашки Петри, заполненной, как и капилляр-пипетка, раствором NaCl или KCl. Внутри пипетки и чашки Петри размещены серебряные электроды, покрытые слоем AgCl, к которым прикладывают напряжение смещения, вызывающее протекание ионного тока через апертуру пипетки. Величина ионного тока $I_{DC}$, протекающего через наноотверстие в капилляре, определяется выражением [10]:

$$I_{DC}(z) = \frac{I_{sat}}{1 + \frac{A}{z}}, \quad (1)$$

где $I_{sat}$ – ток насыщения; $z$ – расстояние до образца; $A$ – величина, позволяющая учесть геометрию пипетки, определяемая через соотношение:

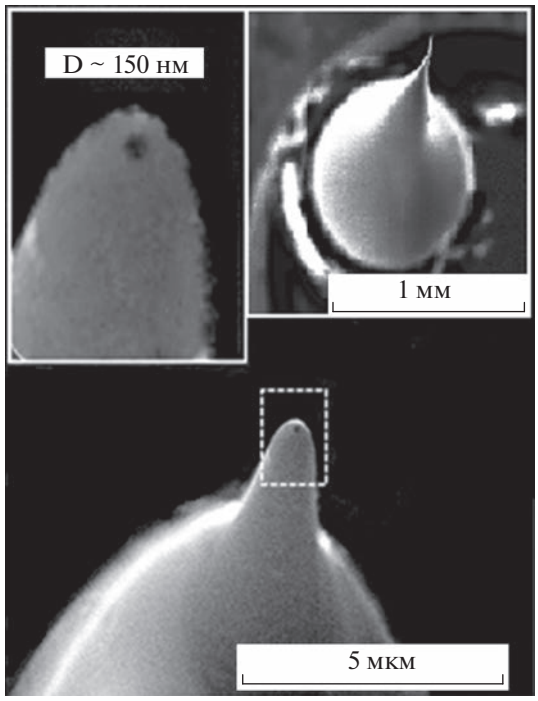


**Рис. 1.** РЭМ-изображения заостренной вершины стеклянной нанопипетки, полученные в режиме вторичных электронов при напряжении 15 кВ при разных увеличениях.

$$A \cong \frac{3\ln\left(\frac{r_0}{r_i}\right) r_i r_0}{2L}, \qquad (2)$$

где $r_0$ – внешний радиус у острого конца пипетки; $r_i$ – внутренний радиус отверстия у острого конца (радиус апертуры) пипетки; $L$ – расстояние от торца пипетки до электрода, расположенного внутри пипетки. Ток насыщения $I_{sat}$ – это ток, который протекает через пипетку, находящуюся на большом расстоянии от образца (по сравнению с апертурой зонда), и определяется через закон Ома:

$$I_{sat} = \frac{V}{R_p}, \qquad (3)$$

где $V$ – напряжение между электродами; $R_p$ – сопротивление пипетки.

Для сопротивления зонда получено соотношение [10, 11]:

$$R_p = \frac{1}{\pi\sigma r_i \operatorname{tg}\alpha}, \qquad (4)$$

где $\sigma$ – электропроводность электролита; $\alpha$ – угол при вершине пипетки.

Выражение (4) используют для определения внутреннего радиуса пипетки $r_i$. Следует отметить, что при малых размерах апертуры на движение ионов влияет двойной электрический слой, образующийся, как известно, на поверхности стекла, в таком случае зависимость ионного тока от напряжения $I_{sat}(V)$ становится нелинейной [12].

Вблизи поверхности образца протекающий через наноапертуру поток ионов блокируется поверхностью образца, и ионный ток уменьшается, в отличие от сканирующего туннельного микроскопа, где туннельный ток увеличивается при приближении нанозонда к образцу. Уменьшение ионного тока при приближении нанопипетки к образцу лежит в основе визуализации его поверхностного рельефа методом СМИП.

В СМИП различают несколько режимов измерений: режим постоянного тока [13]; режим переменного тока с модуляцией напряжения или расстояния между нанопипеткой и образцом [14]; прыжковый режим или режим “швейной машинки” [15].

В режиме постоянного тока следящая система поддерживает постоянное значение ионного тока, и траектория нанопипетки в процессе механического сканирования повторяет рельеф поверхности образца. На качество СМИП-изображений в этом режиме влияют дрейф ионного тока, вызванный трансформацией поверхностного слоя AgCl на серебряных электродах или зарядкой вершины пипетки [16]. Также при больших перепадах рельефа существует опасность поломки пипетки вследствие ее залипания в углублениях на поверхности образца. Для улучшения качества СМИП-изображений используют модуляцию ионного тока либо путем изменения расстояния между поверхностью образца и торцом пипетки с помощью пьезоактуатора, либо путем модуляции напряжения смещения между электродами. Колебания расстояния от зонда до образца уменьшают залипание нанопипетки в углублениях на поверхности образца. Частота модуляции расстояния зонд-образец ограничена резонансной частотой сканера ($f$ ~ 1 кГц), что ограничивает частоту возникающего переменного тока и, как следствие, увеличивает время $\tau \sim 1/f$, необходимое для измерения его амплитуды, и время сканирования. Модуляция ионного тока через модуляцию напряжения смещения позволяет уменьшить время сканирования, поскольку частота модуляции напряжения может быть на порядок выше резонансной частоты сканера. Следует отметить, что модуляция ионного тока с помощью переменного напряжения является наиболее неинвазивным методом, поскольку может быть проведена при небольшой амплитуде переменного напряжения и нулевом постоянном напряжении, что исключает воздействие большого постоянного электрического поля на мягкие биообъекты.

При визуализации шероховатых поверхностей с развитым рельефом наиболее качественные изображения дает прыжковый режим [15]. В прыжко-

вом режиме перед перемещением в новое положение над исследуемой поверхностью расстояние между нанопипеткой и образцом увеличивается на определенную величину за счет изменения опорного сигнала следящей системы, затем осуществляется перемещение в новое положение, после чего в следящей системе задается прежний опорный сигнал, и зонд сближается с поверхностью образца до захвата сигнала равного опорному. Этот алгоритм повторяется по всем "строкам" сканирования. Этот режим дает наиболее качественные изображения поверхностей с развитым рельефом, однако требует большего времени. Очевидно, что для улучшения пространственного разрешения СМИП следует уменьшать диаметр апертуры зонда. Однако надо учитывать, что уменьшение размера апертуры не только приводит к нелинейной зависимости $I(V)$ [16], но и влияет на форму кривой подвода $I(z)$. Например, в [17] продемонстрировано, что в слабых растворах электролитов при определенной полярности напряжения смещения при подводе нанопипетки к заряженным границам раздела сред имеет место не уменьшение, а увеличение ионного тока. Растущая ветвь на зависимости $I(z)$ достаточно подробно исследована в [18]. Следует отметить, что в работах [19, 20] продемонстрирован пик на зависимости $I(z)$. Например, в [19], где были приведены измерения зависимостей $I(V)$ при различных расстояниях от зонда до поверхности образца, такой пик присутствует в неявном виде. Этот пик можно обнаружить, если представленные в [19] данные перестроить в координатах $I(z)$, однако авторы [19] зависимость $I(z)$ в прямом виде не приводят и не обсуждают. В явном виде экстремум на кривой подвод $I(z)$ представлен в [20]. Авторы связывают его с электроосмотическим разделением потоков (движением жидкости через капилляр под действием внешнего электрического поля), однако их предположение не подтверждается расчетными данными и носит сугубо качественный характер. Это предположение опровергают авторы работы [17], в которой учтены электроосмотические потоки и показано, что их вклад в ионный ток в случае СМИП пренебрежимо мал. Таким образом, вопрос о природе экстремума на кривой подвод в настоящее время остается открытым, хотя понимание особенностей поведения зависимости $I(z)$ имеет принципиальное значение для СМИП. Действительно, попадание рабочей точки на растущую ветвь $I(z)$ приведет к возникновению положительной обратной связи в следящей системе, появлению автоколебаний и полной потере работоспособности СМИП. Настоящая работа посвящена поиску причин появления пика на зависимости $I(z)$.

## РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТА

Экспериментальные измерения проводили с использованием прибора для измерений методом СИПМ, сконструированного и описанного авторами [21]. Зонды-нанокапилляры изготовлены из боросиликатного стекла BF-100-69 (Shutter Instruments, США) с использованием установки PMP-107 (Micro Data Instruments, Inc., США) методом теплового плавления и разрыва исходных стеклянных заготовок с внешним и внутренним диаметрами 1.2 мм и 0.69 мм, соответственно. Угол при заостренной вершине нанокапилляра и диаметр апертуры, измеренные методом растровой электронной микроскопии (РЭМ) на приборе Inspect (FEI, США), составляли ~2°–5° и ~150 нм соответственно. Также проводили эксперименты с нанокапиллярами, имеющими примерно такой же угол заострения, но диаметр апертуры – менее 50 нм. В этом случае диаметр апертуры вычисляли путем измерения сопротивления нанопипетки, согласно выражению (4). Образцом служил предварительно расплавленный полимерный термоклей (этиленвинилацетат с добавками пластификатора). Образец устанавливали на дно чашки Петри, заполненной, как и стеклянная пипетка, электролитом (0.9% раствор NaCl в воде). Использовали электроды из Ag проволоки диаметром ~300 мкм, покрытые слоем AgCl. Электрод, размещенный в стеклянном капилляре, заземляли. К электроду, находящемуся в чашке Петри, прикладывали положительное или отрицательное напряжение смещения в диапазоне (0–0.7) В. Для снижения механических вибраций, акустических шумов, тепловых дрейфов и электромагнитных наводок использовали стол с активной виброзащитой и металлический защитный колпак.

На рис. 1 приведено типичное РЭМ-изображение вершины зонда с апертурой ~150 нм. При отрицательном напряжении смещения между электродом в чашке и электродом в пипетке при сближении с поверхностью ионный ток $I(z)$ изменяется стандартным образом (рис. 2а), что позволяет получить СМИП-изображение. На рис. 2б представлено СМИП-изображение поверхности образца, полученное в режиме постоянного тока при отрицательном напряжении –0.6 В между AgCl-электродом в чашке Петри и заземленном электродом в пипетке. Отметим, что при больших апертурах с сопротивлениями менее 30 МОм никаких воспроизводимых пиков на кривых подвода не было обнаружено.

Однако в случае нанопипеток с апертурой диаметром в диапазоне 15–50 нм, имеющих сопротивление 150–30 МОм, кривые подвода демонстрировали необычное поведение. При подводе зонда к поверхности образца на расстояния, соизмеримые с внешним диаметром нанопипетки (~150–200 нм), ионный ток возрастал, становясь

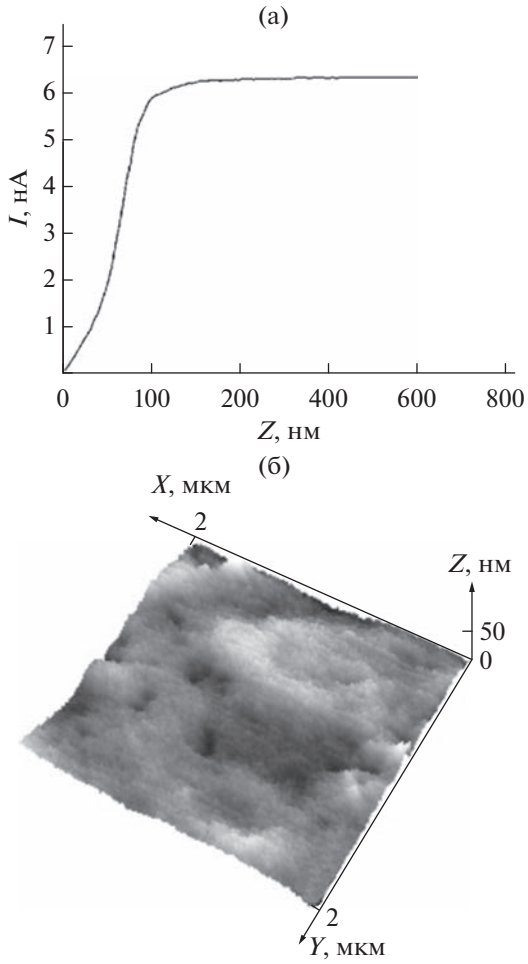


**Рис. 2.** Кривая подвода $I(z)$, полученная при напряжении смещения –0.6 на AgCl электроде в чашке Петри относительно заземленного электрода внутри пипетки (а) и СМИП-изображение поверхности полимера, полученное в режиме постоянного тока при напряжении смещения $V = -0.6$ В и токе $I = 5.9$ нА (б).

больше тока насыщения $I_{sat}$, проходил через максимум, превышающий на 10–30% ток насыщения, и затем спадал (кривая *1* на рис. 3). Такое поведение наблюдали примерно в 50% случаев измерения кривых подвода, выполненных в разных точках на поверхности образца. В дальнейшем будем называть такое необычное поведение ионного тока при сближении нанопипетки с поверхностью образца “пик-эффектом”. Следует отметить, что “пик-эффект” обнаружен только при положительном смещении на электроде в чашке Петри относительно заземленного электрода в пипетке. При отрицательном смещении при сближении с поверхностью ионный ток стандартным образом (рис. 2а) уменьшался вследствие перекрытия апертуры поверхностью образца, и “пик-эффект” никогда не наблюдали.

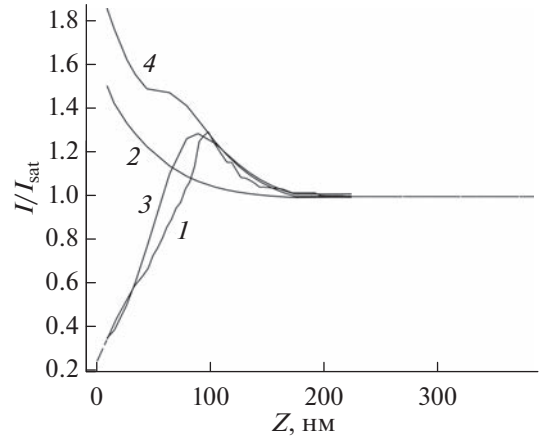


**Рис. 3.** Экспериментальная (*1*) и расчетные кривые подвода, полученные при постоянной плотности поверхностного заряда без учета нагрева электролита (*2*), при переменной плотности поверхностного заряда с учетом нагрева электролита (*3*) и без (*4*) для пипетки с диаметром апертуры ~50 нм при напряжении смещения $V = 0.5$ В на AgCl электроде в чашке Петри относительно заземленного электрода в пипетке.

## ЧИСЛЕННОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ

Расчет ионного тока выполнен методом конечных элементов с использованием программного пакета COMSOL. В силу симметрии задачи относительно поворота вокруг оси капилляра решали двумерную осесимметричную задачу для микрофлюидной системы в виде Т-образного канала конической формы, заполненного электролитом (рис. 4). Серым цветом обозначена область, заполненная электролитом.

Расчетная модель включала в себя следующие физические модули программного пакета COMSOL: Tertiary Current Distribution, Nernst-Plank из раздела Electrochemistry, с помощью которых учтено распределение локального электростатического потенциала в модели пипетки с учетом индивидуального переноса ионов в электролите из-за диффузии и электромиграции с использованием уравнений Нернста–Планка; Heat Transfer in Fluids, предназначенный для учета нагрева, вызванного протеканием ионного тока в электролите. Модули были объединены мультифизической связкой Electrochemical Heating, позволяющей учитывать нагрев в объеме электролита, возникающий вследствие прохождения ионного тока. Граничные условия для областей, отмеченных цифрами на рис. 4, представлены в табл. 1.

Связь между распределением локального электростатического потенциала и концентрацией ионов учитывали с помощью уравнения Пуассона:

$$\nabla^2\varphi = -\frac{F}{\varepsilon\varepsilon_0}\sum_i z_i c_i, \qquad (5)$$

где $F$ – постоянная Фарадея; ε – диэлектрическая проницаемость среды; $\varepsilon_0$ – электрическая постоянная; $z_i$ – заряд иона определенного знака, $c_i$ – концентрация ионов определенного знака.

Ионный транспорт учтен с помощью уравнения Нернста–Планка:

$$J_i = -D_i \nabla c_i - z_i u_{m,i} F c_i \nabla \varphi, \qquad (6)$$

где $J_i$ – ионный поток; $D_i$ – коэффициент диффузии; $c_i$ – концентрация ионов определенного знака; φ – локальный электрический потенциал; $u_{m,i}$ – подвижность ионов определенного знака, массоперенос в системе в силу его малости не учитывали.

Ионный ток рассчитан как интеграл по площади $S$:

$$I = -F \int_S \left( J(\mathrm{Na}^+) - J(\mathrm{Cl}^-) \right) n dS, \qquad (7)$$

где $J(\mathrm{Na}^+)$ – ионный поток ионов натрия; $J(\mathrm{Cl}^-)$ – ионный поток ионов хлора.

Отметим, что в [16, 17] решена подобная задача с учетом отрицательного поверхностного заряда на пипетке, но без учета его зависимости от концентрации ионов и разогрева электролита током, протекающим в наноканале. Авторы этих работ показали, что наличие постоянного поверхностного заряда приводит к росту ионного тока при приближении нанопипетки к поверхности образца (кривая *2* на рис. 3). Однако такая модель не объясняет “пик-эффект”. Построенная в настоящей работе модель позволяет получить пик на рассчитанной кривой подвода $I(z)$ (кривая *3* на рис. 3), если учесть два факта: увеличение плотности отрицательного поверхностного заряда при увеличении концентрации ионов в наноканале [22] и нагрев электролита ионным током, протекающим в наноканале. На рис. 5 видно, что концентрация как ионов хлора, так и ионов натрия по мере сближения пипетки с образцом увеличивается как на оси симметрии, так и около внутренней стенки пипетки. Следует отметить, что концентрация ионов натрия около стенки пипетки существенно выше, чем в объеме канала. Это вызвано отрицательным поверхностным зарядом на стенке стеклянного капилляра в водных растворах, которое было заложено в расчет. Как ска-

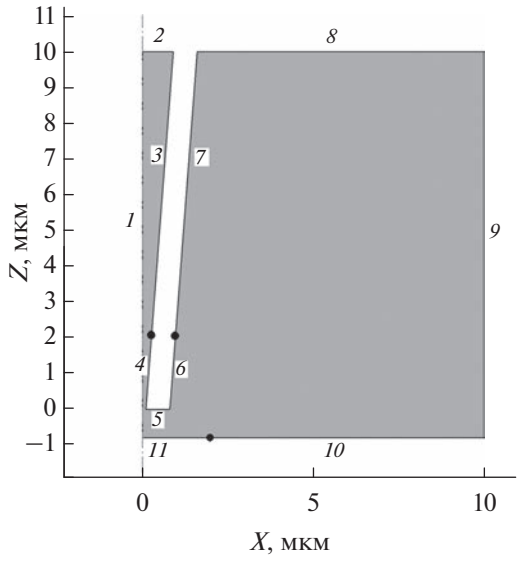


**Рис. 4.** Двумерная модель для расчета ионного тока, протекающего по осесимметричному коническому каналу через наноапертуру вблизи плоской поверхности. Серым цветом обозначен раствор электролита. Точками разделены области с разными граничными условиями.

**Таблица 1.** Граничные условия, использованные в расчете ионного тока

| Номер границы | Функции (программные модули Comsol) | |
|---|---|---|
| | Electrochemistry, Tertiary Current Distribution, Nernst-Plank | Heat Transfer in Fluids |
| 2 | $C(\mathrm{Na}) = C_0$, $C(\mathrm{Cl}) = C_0$, $V = V_0$ | Граница с внешней средой, $T = T_0$ |
| 3 | Электроизоляция | Термоизоляция |
| 4 | Учет отрицательного поверхностного заряда на пипетке | Термоизоляция |
| 5 | Учет отрицательного поверхностного заряда на пипетке | Термоизоляция |
| 6 | Учет отрицательного поверхностного заряда на пипетке | Термоизоляция |
| 7 | Электроизоляция | Термоизоляция |
| 8 | $C(\mathrm{Na}) = C_0$, $C(\mathrm{Cl}) = C_0$, $V = 0$ | Граница с внешней средой, $T = T_0$ |
| 9 | Электроизоляция | Граница с внешней средой, $T = T_0$ |
| 10 | Электроизоляция | Граница образца, термоизоляция |
| 11 | Учет поверхностного заряда на образце | Граница образца, термоизоляция |

Примечание: $C_0 = 100$ ммоль – начальная концентрация ионов, $C(\mathrm{Na})$, $C(\mathrm{Cl})$ – концентрация ионов $\mathrm{Na}^+$ и $\mathrm{Cl}^-$, соответственно, $V_0 = -1$ В – напряжение смещения, $T_0 = 293.15$ K – температура внешней среды. В расчеты заложен отрицательный заряд на поверхности пипетки, который, как известно, возникает на поверхности стеклянных капилляров в водных растворах.

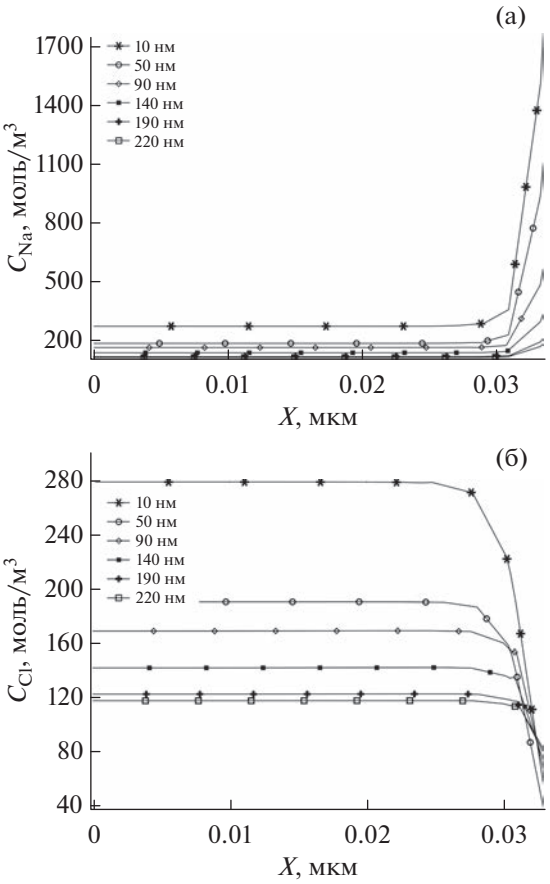


**Рис. 5.** Изменение концентрации ионов $Na^+$ (а) и $Cl^-$ (б) по мере сближения пипетки и образца от 190 до 10 нм ($X = 0$ соответствует оси симметрии пипетки).

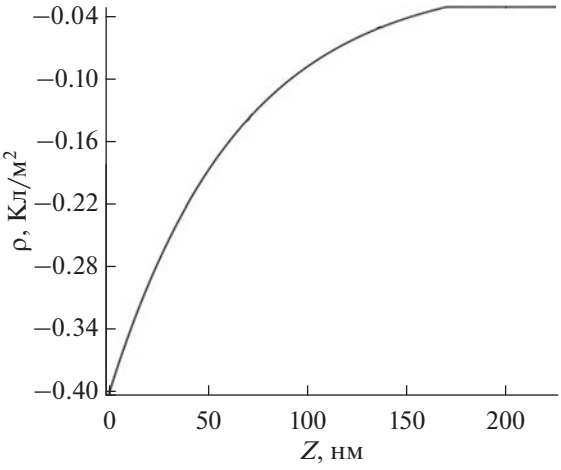


**Рис. 6.** Зависимость плотности поверхностного заряда ρ от расстояния между пипеткой и образцом $Z$.

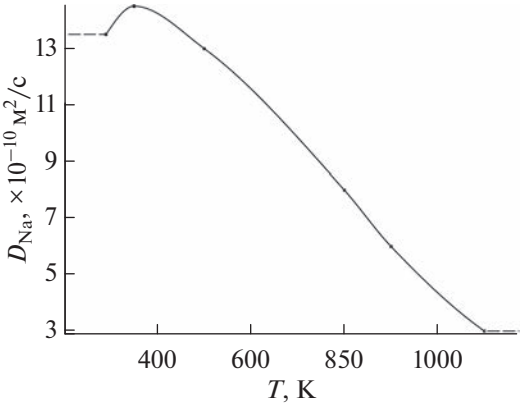


**Рис. 7.** Зависимость коэффициента диффузии ионов $Na^+$ от температуры.

зано выше, мы учли повышение плотности поверхностного заряда при увеличении концентрации ионов, введя эмпирическую регулирующую функцию зависимости поверхностной плотности ионов на конце нанопипетки от расстояния до образца таким образом, чтобы модельная кривая подвода качественно соответствовала экспериментальным кривым, демонстрирующим "пик-эффект". На рис. 6 представлена заложенная в расчет зависимость плотности поверхностного заряда ρ от расстояния между пипеткой и образцом $Z$, позволяющая учесть рост заряда на поверхности пипетки через рост концентрации ионов при сближении пипетки с поверхностью образца. Решение для модели ионного тока с учетом увеличения поверхностного заряда на пипетке и на образце при сближении (но без учета нагрева электролита) имеет перегиб на растущей ветви (кривая *4* на рис. 3).

Известно, что при повышении температуры проводимость электролитов сначала растет, а начиная с определенной температуры, испытывает падение [23]. С учетом связи между проводимостью электролита и коэффициентом диффузии мы ввели в расчеты зависимость коэффициента диффузии от температуры, представленную на рис. 7. На рис. 8 приведены расчетные данные распределения температуры в зазоре между торцом пипетки и образцом, полученные в результате учета разогрева электролита. Завышенное значение температуры мы связываем с тем, что в упрощенной модели не учтен теплоотвод через стенки пипетки. Как следует из данных, представленных на рис. 3, учет указанных выше обстоятельств, приводит к качественному соответствию между экспериментальными данными (кривая *1* на рис. 3) и результатами расчета (кривая *3*). Таким образом, учет увеличения поверхностного заряда на зонде и на образце при приближении нанопипетки к поверхности образца и учет разогрева электролита дают пик на кривой подвод (кривая *3* на рис. 3), причем пик возникает только при отрицательном заряде на поверхности образца.

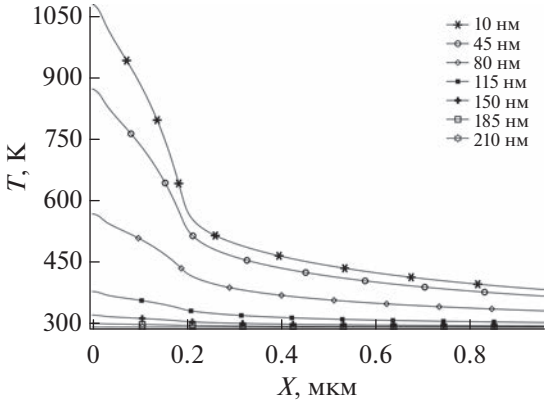


**Рис. 8.** Распределение температуры в зазоре между торцом пипетки и образцом.

## РЕЗУЛЬТАТЫ И ВЫВОДЫ

В работе дано объяснение необычного поведения ионного тока, протекающего через нанопипетку при ее сближении с плоской поверхностью образца во время измерений методом СМИП. Экспериментально продемонстрирован “пик-эффект”, заключающийся в возникновении экстремума на кривой подвода $I(z)$ на поверхности полимера в растворе NaCl (0.9%) с использованием зондов-нанокапилляров с диаметром апертуры менее 50 нм (сопротивлением более 30 МОм). Значение ионного тока в пике может на 30% превышать ток насыщения, протекающий через наноапертуру вдали от поверхности образца. “Пик-эффект” имеет место только при положительном знаке электрического потенциала на AgCl электроде, погруженном в бюксы с образцом, относительно электрода, размещенного в капилляре. При отрицательном потенциале зависимость $I(z)$ имеет стандартный монотонный вид, соответствующий экранированию наноапертуры поверхностью образца при их сближении. Для объяснения “пик-эффекта” построена модель микрофлюидной системы “конический наноканал – плоскость”, в которой учтена зависимость поверхностного заряда от концентрации ионов в наноканале и разогрев электролита ионным током. Результаты расчета зависимости $I(z)$ при моделировании методом конечных элементов качественно согласуются с экспериментальными данными. Это позволяет предположить, что физические механизмы, на которых построена модель, действительно, являются причиной возникновения “пик-эффекта”. Существование “пик-эффекта” необходимо принимать во внимание при выборе рабочей точки на зависимости $I(z)$ при исследовании полимеров методом СМИП.

## БЛАГОДАРНОСТИ

Работа выполнена при поддержке Министерства науки и высшего образования РФ в рамках государственного задания № FFZM-2022-0008 (тема № 22 542,089).

## КОНФЛИКТ ИНТЕРЕСОВ

Авторы заявляют, что конфликта интересов нет.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Hansma P.K., Drake B., Marti O., Gould S.A., Prater S.B.* // Science 1989. V. 243. P. 641. https://www.doi.org/10.1126/science.2464851
2. *Shevchuk A.I., Frolenkov G.I., Sanchez D., James P.S., Freedman N., Lab M.J., Jones R., Klenerman D., Korchev Y.E.* // Angew. Chem. Int. Ed. 2006. V. 45. P. 2212. https://www.doi.org/10.1002/anie.200503915
3. *Макарова Е.С., Яминский И.В.* // Медицина и высокие технологии 2016. Т. 1. С. 39.
4. *Яминский И.В., Ахметова А.И., Советников Т.О., Тихомирова М.А., Янг Ш.* // Наноиндустрия 2022. Т. 15. № 3. С. 168. https://www.doi.org/10.22184/1993-8578.2022.15.3-4.168.173
5. *Comstock D.J., Elam J.W., Pellin M.J., Hersam M.C.* // Anal. Chem. 2010. V. 82. P. 1270. https://www.doi.org/10.1021/ac902224q
6. *Rodolfa K.T., Bruckbauer A., Zhou D., Korchev Y.E., Klenerman D.* // Angew. Chem. Int. Ed. 2005. T. 44. P. 6854. https://www.doi.org/10.1002/anie.200502338
7. *Momotenko D., Page A., Adobes-Vidal M., Unwin P.R.* // ACS Nano V. 10. P. 8871. https://www.doi.org/10.1021/acsnano.6b04761
8. *Shevchuk A.I., Hobson P., Lab M.J., Klenerman D., Krauzewicz N., Korchev Y.E.* // Pflugers Arch. Eur. J. Physiol. 2008. V. 456. P. 227. https://www.doi.org/10.1007/s00424-007-0410-4
9. *Dorwling-Carter L., Aramesh M., Han H., Zambelli T., Momotenko D.* // Anal. Chem. 2018. V. 90. P. 19.
10. *Thatenhorst D., Rheinlaender J., Schaffer T.E., Dietzel I.D., Happel P.* // Anal. Chem. 2014. V. 86. P. 9838.
11. *Rheinlaender J., Schäffer T.E.* // Anal. Chem. 2017. V. 89. P. 11875. https://www.doi.org/10.1021/acs.analchem.7b03871
12. *Wei C., Bard A.J., Feldberg S.W.* // Anal. Chem. 1997. V. 69. P. 4627. https://www.doi.org/10.1021/ac970551g
13. *Chen C-C., Zhou Y., Baker L.A.* // Annu. Rev. Anal. Chem. 2012. V. 5. P. 207. https://www.doi.org/10.1146/annurev-anchem-062011-143203
14. *Chen C-C., Bake L.A.* // Analyst 2011. V. 136. P. 90. https://www.doi.org/10.1039/C0An00604A
15. *Novak P. et al.* // Nat. Methods 2009. V. 6. P. 279. https://www.doi.org/10.1038/nmeth.1306

16. *Sa N., Baker L.A.* // J. Am. Chem. Soc. 2011. V. 133. P. 10398. https://www.doi.org/10.1021/ja203883q
17. *McKelvey K., Kinnear S.L., Perry D., Momotenko D., Unwin P.R.* // J. Am. Chem. Soc. 2014. V. 136. P. 13. https://www.doi.org/10.1021/la5020412
18. *Yingfei M., Rujia L., Xiaoyue S., Dengchao W.* // Chem. Electrochem. 2021. V. 8. P. 3917. https://www.doi.org/10.1002/celc.202101180
19. *Sa N., Lan W.J., Shi W., Baker L.A.* // ACS Nano 2013. V. 7. №. 11. P. 272. https://www.doi.org/10.1021/nn4050485.
20. *Clarke R.W., Zhukov A., Richards O., Johnson N., Ostanin V., Klenerman D.* // American Chem. Soc. 2012. https://www.doi.org/10.1021/ja3094586
21. *Zhukov M.V., Lukashenko S.Yu., Sapozhnikov I.D., Felshtyn M.L., Gorbenko O.M., Golubok A.O.* // J. Phys.: Conf. Ser. 2021. V. 2086. https://www.doi.org/10.1088/1742-6596/2086/1/012074
22. *Zhang L., Biesheuve P.M., Ryzhkov I.I.* // Phys. Rev. Appl. 2019. V. 12. P. 014039. https://www.doi.org/10.1103/PhysRevApplied.12.014039
23. *Bannard J.E.* // J. Appl. Electrochem. 1975. V. 5. P. 43. https://www.doi.org/10.1007/BF00625958

# Behavior Features of the Approach Curve of a Scanning Ion-Conductance Microscope

**S. Yu. Lukashenko[1, *], O. M. Gorbenko[1, **], M. V. Zhukov[1], S. V. Pichahchi[1], I. D. Sapozhnikov[1], M. L. Felshtyn[1], A. O. Golubok[1, ***]**

*[1]IAI RAS, Saint-Petersburg, 198095 Russia*
**e-mail: stas.lukashenko@mail.ru*
***e-mail: gorolga64@gmail.com*
****e-mail: aogolubok@mail.ru*

The operation of a scanning ion-conductance microscope is based on the assumption that the ion current $I(z)$ flowing in an electrolyte solution through the narrow aperture of a probe in the form of a glass nanopipette has a maximum saturation value away from the sample under study and decreases as the probe approaches the surface. The value of the scanning ion-conductance microscope operating current is usually chosen near the saturation current $I \sim 09I_{sat}$. However, in some cases there is an unusual behavior of the $I(z)$ approach curve near the surface when the ion current increases as the nanopipette approaches the sample surface. The appearance of a peak on the $I(z)$ curve as the nanopipette approaches the sample surface is what we call the "peak effect". It is obvious that the peak effect can lead to a failure in the operation of the scanning ion-conductance microscope servo system and noise at the images getting by scanning ion-conductance microscope. In this work the appearance of a peak on the approach curve have been studied experimentally. Considering the nanopipette near the sample surface as a microfluidic system in the form of a T – shaped channel the $I(z)$ dependence using the finite element method and the COMSOL software package have been calculated.

**Keywords:** scanning ion conductance microscopy, nanopipette, surface charge, polymers, approach curve, microfluidic system.

УДК 537.8

# ВЛИЯНИЕ МНОГОКРАТНОГО РАССЕЯНИЯ НА СПЕКТРАЛЬНО-УГЛОВУЮ ПЛОТНОСТЬ ДИФРАГИРОВАННОГО ПЕРЕХОДНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ

© 2023 г. С. В. Блажевич[a], А. С. Горлов[b], А. В. Носков[a, b, *], А. Э. Федосеев[a]

[a] Белгородский государственный национальный исследовательский университет, Белгород, 308015 Россия

[b] Белгородский государственный технологический университет им. В.Г. Шухова, Белгород, 308012 Россия

*e-mail: noskovbupk@mail.ru

Поступила в редакцию 10.07.2022 г.
После доработки 14.10.2022 г.
Принята к публикации 14.10.2022 г.

В работе исследуется дифрагированное переходное излучение релятивистского электрона пересекающего монокристаллическую пластинку в геометрии рассеяния Брэгга. Получены выражения, описывающие спектрально-угловую плотность дифрагированного переходного излучения с учетом и без учета многократного рассеяния релятивистского электрона в монокристаллической пластинке. Показано влияние многократного рассеяния на спектр дифрагированного переходного излучения релятивистского электрона.

**Ключевые слова:** многократное рассеяние, дифрагированное переходное излучение, релятивистский электрон.

**DOI:** 10.31857/S1028096023050035, **EDN:** ALIMQZ

## 1. ВВЕДЕНИЕ

При пересечении заряженной частицей границы раздела двух сред возникает переходное излучение (ПИ) [1, 2]. Влияние многократного рассеяния заряженной частицы атомами среды на спектрально-угловую плотность ПИ в аморфной среде обсуждалось в работах [3–5]. В работах [3, 4] влияние многократного рассеяния, соответственно, на спектр и угловую плотность ПИ рассматривалось на качественном уровне, а в работе [5] – с использованием строгого кинетического подхода к усреднению спектрально-угловой плотности ПИ по всем возможным траекториям движения электрона в веществе.

Переходное излучение, возникающие на передней границе монокристаллической мишени, дифрагирует на системе параллельных атомных плоскостей кристалла, образуя в направлении близком к направлению рассеяния Брэгга в узком спектральном диапазоне дифрагированное переходное излучение (ДПИ) [6–8]. Важно отметить, что в рентгеновском диапазоне частот экспериментально может быть обнаружено и исследовано ДПИ от одной границы мишени, в отличие от ПИ, которое можно наблюдать только от двух границ, т.е. в условиях значительного влияния на спектрально-угловую плотность излучения интерференции волн ПИ от разных границ и фотопоглощения волн материалом мишени. При этом ПИ имеет еще и очень широкий спектр, что значительно снижает возможности исследования влияния многократного рассеяния релятивистских электронов на спектрально-угловую плотность ПИ. ДПИ имеет очень узкий частотный диапазон, является по сути переходным излучением только от одной границы, поэтому, по мнению авторов, является важным и удобным объектом для исследования влияния многократного рассеяния излучающих релятивистских электронов на угловую плотность ПИ.

В работах [9–11] влияние расходимости электронного пучка на спектрально-угловые характеристики ДПИ и параметрического рентгеновского излучение (ПРИ) исследовалось в геометрии рассеяния Лауэ.

Настоящая работа посвящена исследованию ДПИ, возбуждаемого пучком релятивистских электронов, пересекающих монокристаллическую пла-

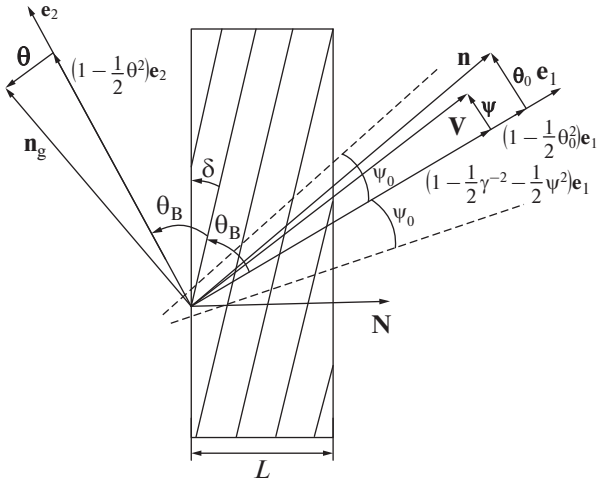


**Рис. 1.** Геометрия процесса излучения.

стинку произвольной толщины в геометрии рассеяния Брэгга с учетом многократного рассеяния пучка релятивистских электронах на атомах мишени. Для учета многократного рассеяния используется традиционный метод усреднения спектрально-угловой и угловой плотностей излучений по расширяющемуся пучку прямолинейных траекторий электронов.

## 2. ГЕОМЕТРИЯ ПРОЦЕССА ИЗЛУЧЕНИЯ

Рассмотрим пучок релятивистских электронов, пересекающих монокристалл в геометрии рассеяния Брэгга (рис. 1). Введем угловые переменные $\boldsymbol{\psi}$, $\boldsymbol{\theta}$ и $\boldsymbol{\theta}_0$ в соответствии с определениями скорости выделенного в пучке релятивистского электрона $\mathbf{V}$ и единичных векторов: $\mathbf{n}$ – в направлении импульса фотона, излученного вблизи направления вектора скорости электрона, и $\mathbf{n_g}$ – в направлении рассеяния Брэгга:

$$\mathbf{V} = \left(1-\frac{1}{2}\gamma^{-2}-\frac{1}{2}\psi^2\right)\mathbf{e}_1 + \boldsymbol{\psi}, \quad \mathbf{e}_1\boldsymbol{\psi} = 0,$$
$$\mathbf{n} = \left(1-\frac{1}{2}\theta_0^2\right)\mathbf{e}_1 + \boldsymbol{\theta}_0, \quad \mathbf{e}_1\boldsymbol{\theta}_0 = 0, \qquad (1)$$
$$\mathbf{e}_1\mathbf{e}_2 = \cos 2\theta_B, \quad \mathbf{n_g} = \left(1-\frac{1}{2}\theta^2\right)\mathbf{e}_2 + \boldsymbol{\theta}, \quad \mathbf{e}_2\boldsymbol{\theta} = 0,$$

где $\boldsymbol{\theta}$ – угол излучения, отсчитываемый от оси детектора излучения $\mathbf{e}_2$, $\boldsymbol{\psi}$ – угол отклонения рассматриваемого электрона в пучке, отсчитываемый от оси электронного пучка $\mathbf{e}_1$, $\boldsymbol{\theta}_0$ – угол между направлением распространения падающего фотона и осью $\mathbf{e}_1$, $\gamma = 1/\sqrt{1-V^2}$ – Лоренц-фактор электрона. Угловые переменные рассматриваются в виде суммы составляющих параллельных и перпендикулярных плоскости рисунка: $\boldsymbol{\theta} = \boldsymbol{\theta}_\parallel + \boldsymbol{\theta}_\perp$, $\boldsymbol{\theta}_0 = \boldsymbol{\theta}_{0\parallel} + \boldsymbol{\theta}_{0\perp}$, $\boldsymbol{\psi} = \boldsymbol{\psi}_\parallel + \boldsymbol{\psi}_\perp$. $\psi_0$ – начальная расходимость электронного пучка, $\mathbf{N}$ – нормаль к поверхности мишени, $\delta$ – угол между кристаллографической дифрагирующей плоскостью и поверхностью мишени, $\theta_B$ – угол Брэгга.

## 3. СПЕКТРАЛЬНО-УГЛОВАЯ И УГЛОВАЯ ПЛОТНОСТИ ИЗЛУЧЕНИЯ

В работе [12] в рамках двухволнового приближения динамической теории дифракции была развита теория когерентного рентгеновского излучения, возбуждаемого в монокристалле в геометрии рассеяния Брэгга пучком релятивистских электронов в направлении $\mathbf{n}$ (рис. 1) близком к направлению $\mathbf{e}_1$ оси пучка. Были получены выражения, описывающие амплитуды напряженностей электрических полей волн параметрического рентгеновского излучение вблизи направления скорости релятивистского электрона (ПРИВ) и переходного излучения (ПИ). На их основе были получены и исследованы выражения, описывающие спектрально-угловые характеристики ПРИВ, ПИ и их интерференционное слагаемое.

Используя обозначения и рассуждения аналогичные проведенным в работе [11], в настоящей работе мы получили выражение для амплитуды напряженности когерентного рентгеновского излучения $E^{(s)}_{\mathrm{Rad}}$, возбуждаемого в тонкой непоглощающей монокристаллической мишени релятивистским электроном, движущегося в пучке под углом $\boldsymbol{\psi}(\psi_\parallel, \psi_\perp)$ к оси пучка $\mathbf{e}_1$. Амплитуда поля излучения была представлена в виде суммы полей, одно из которых соответствует вкладу механизма ПРИ $\left(E^{(s)}_{\mathrm{PXR}}\right)$, а другое вкладу ДПИ $\left(E^{(s)}_{\mathrm{DTR}}\right)$. Амплитуда поля ДПИ имеет вид:

$$E^{(s)}_{\text{ДПИ}} = \frac{8\pi^2 ieV\Omega^{(s)}}{\omega}\frac{\omega^2\chi_g C^{(s,\tau)}}{2\omega\Delta}\times$$
$$\times\left[\frac{1}{\left|\frac{\gamma_0}{\gamma_g}\right|\left(-\chi_0(\omega)-\frac{2}{\omega}\frac{\gamma_0}{\gamma_g}\lambda^*_g+\beta\frac{\gamma_0}{\gamma_g}\right)}+\frac{\omega}{2\left|\frac{\gamma_0}{\gamma_g}\right|\lambda^*_0}\right]\times \qquad (2)$$
$$\times\left(\Delta^{(2)}-\Delta^{(1)}\right),$$

где

$$\Delta = \lambda_{\mathbf{g}}^{(2)} \exp\left( i\frac{\lambda_{\mathbf{g}}^{*} - \lambda_{\mathbf{g}}^{(2)}}{\gamma_{\mathbf{g}}} L \right) - \lambda_{\mathbf{g}}^{(1)} \exp\left( i\frac{\lambda_{\mathbf{g}}^{*} - \lambda_{\mathbf{g}}^{(1)}}{\gamma_{\mathbf{g}}} L \right),$$

$$\Delta^{(2)} = \exp\left( i\frac{\lambda_{\mathbf{g}}^{*} - \lambda_{\mathbf{g}}^{(2)}}{\gamma_{\mathbf{g}}} L \right), \quad \Delta^{(1)} = \exp\left( i\frac{\lambda_{\mathbf{g}}^{*} - \lambda_{\mathbf{g}}^{(1)}}{\gamma_{\mathbf{g}}} L \right),$$

$$C^{(s,\tau)} = (-1)^{\tau} C^{(s)}, \quad C^{(1)} = 1, \quad C^{(2)} = \left|\cos 2\theta_{\mathrm{B}}\right|,$$

$$\mathrm{T}\lambda_{\mathbf{g}}^{(1,2)} = \frac{\omega\left|\chi_{\mathbf{g}}' C^{(s)}\right|}{2}\left(\xi^{(s)} \pm \sqrt{\xi^{(s)2} - \varepsilon}\right),$$

$$\lambda_{\mathbf{g}}^{*} = \frac{\omega\left|\chi_{\mathbf{g}}' C^{(s)}\right|}{2}\left(2\xi^{(s)} - \varepsilon\sigma^{(s)}\right), \qquad (3)$$

$$\xi^{(s)}(\omega) = \eta^{(s)}(\omega) + \frac{1+\varepsilon}{2\nu^{(s)}},$$

$$\sigma^{(s)} = \frac{1}{\left|\chi_{\mathbf{g}}'\right| C^{(s)}}\left(\gamma^{-2} + (\theta_{\perp} - \psi_{\perp})^2 + (\theta_{\parallel} + \psi_{\parallel})^2 - \chi_0'\right),$$

$$\eta^{(s)}(\omega) = \frac{2\sin^2\theta_{\mathrm{B}}}{V^2\left|\chi_{\mathbf{g}}'\right| C^{(s)}}\left(1 - \frac{\omega(1 - \theta_{\parallel}\mathrm{ctg}\theta_{\mathrm{B}})}{\omega_{\mathrm{B}}}\right),$$

$$\nu^{(s)} = \frac{\chi_{\mathbf{g}}' C^{(s)}}{\chi_0'}, \quad \varepsilon = \frac{\sin(\theta_{\mathrm{B}} - \delta)}{\sin(\theta_{\mathrm{B}} + \delta)},$$

$\chi_0'$ – действительная часть средней диэлектрической восприимчивости монокристалла, $\chi_{\mathbf{g}}'$ – действительная часть коэффициента Фурье разложения диэлектрической восприимчивости монокристалла по векторам обратной решетки g:

$$\chi(\omega, \mathbf{r}) = \sum_{\mathbf{g}}\left(\chi_{\mathbf{g}}'(\omega) + i\chi_{\mathbf{g}}''(\omega)\right)\exp(i\mathbf{gr}),$$

$$\chi_{\mathbf{g}}' = \chi_0'\left(\mathrm{F(g)}/Z\right)\left(\mathrm{S(g)}/N_0\right)\exp\left(-\frac{1}{2}g^2 u_{\tau}^2\right),$$

где F(g) – форм фактор атома, содержащего $Z$ электронов; S(**g**) – структурный фактор элементарной ячейки, содержащей $N_0$ атомов; $u_{\tau}$ – среднеквадратичная амплитуда тепловых колебаний атомов кристалла. В работе рассматривается рентгеновская область частот ($\chi_{\mathbf{g}}' < 0, \chi_0' < 0$).

Так как в области рентгеновских частот выполняется неравенство $\dfrac{2\sin^2\theta_{\mathrm{B}}}{V^2\left|\chi_{\mathbf{g}}'\right| C^{(s)}} \gg 1$, то $\eta^{(s)}(\omega)$ является быстрой функцией от частоты ω. Для дальнейшего анализа спектров ПРИ и ДПИ удобно рассматривать $\eta^{(s)}(\omega)$ (или $\xi^{(s)}(\omega)$) в качестве спектральной переменной, характеризующей частоту ω.

Параметр $\nu^{(s)}$, принимающий значения в промежутке $0 \le \nu^{(s)} \le 1$, определяет степень отражения поля волны излучения от рассматриваемой системы параллельных атомных плоскостей монокристалла, которая обусловливается характером интерференции волн, отраженных от разных плоскостей. Параметр ε для фиксированного значения $\theta_{\mathrm{B}}$ определяет ориентацию входной поверхности мишени относительно отражающей системы параллельных атомных плоскостей монокристалла.

Подставляя (2) в известное выражение для спектрально-угловой плотности рентгеновского излучения:

$$\omega\frac{d^2 N_{\text{ДПИ}}^{(s)}}{d\omega d\Omega} = \omega^2 (2\pi)^{-6}\sum_{s=1}^{2}\left|E_{\text{ДПИ}}^{(s)}\right|^2, \qquad (4)$$

получаем выражение для спектрально-угловой плотности ДПИ релятивистского электрона, учитывающие отклонение направления его скорости **V** относительно оси электронного пучка $\mathbf{e}_1$ (угол $\boldsymbol{\psi}(\psi_{\perp}, \psi_{\parallel})$):

$$\omega\frac{d^2 N_{\text{ДПИ}}^{(s)}}{d\omega d\Omega} =$$

$$= \frac{e^2}{\pi^2}\left(\frac{\Omega^{(s)}}{\Delta(\theta_{\perp}, \theta_{\parallel}, \psi_{\perp}, \psi_{\parallel})} - \frac{\Omega^{(s)}}{\Delta(\theta_{\perp}, \theta_{\parallel}, \psi_{\perp}, \psi_{\parallel}) - \chi_0'}\right)^2 R_{\text{ДПИ}}^{(s)}, \qquad (5а)$$

$$R_{\text{ДПИ}}^{(s)} = \frac{\varepsilon^2}{\xi^{(s)^2} - (\xi^{(s)^2} - \varepsilon)\,\mathrm{cth}^2\left(\dfrac{b^{(s)}\sqrt{\varepsilon - \xi^{(s)2}}}{\varepsilon}\right)}, \qquad (5б)$$

где

$$\Delta(\theta_{\perp}, \theta_{\parallel}, \psi_{\perp}, \psi_{\parallel}) =$$
$$= \gamma^{-2} + (\theta_{\perp} - \psi_{\perp})^2 + (\theta_{\parallel} + \psi_{\parallel})^2,$$
$$\Omega^{(1)} = \theta_{\perp} - \psi_{\perp}, \quad \Omega^{(2)} = \theta_{\parallel} + \psi_{\parallel}, \qquad (6)$$
$$b^{(s)} = \frac{1}{2\sin(\theta_{\mathrm{B}} + \delta)}\frac{L}{L_{\text{ext}}^{(s)}}, \quad L_{\text{ext}}^{(s)} = 1\Big/\omega\left|\chi_{\mathbf{g}}'\right| C^{(s)}.$$

## 4. УЧЕТ МНОГОКРАТНОГО РАССЕЯНИЯ РЕЛЯТИВИСТСКИХ ЭЛЕКТРОНОВ В МОНОКРИСТАЛЛЕ

Рассмотрим один электрон, движущийся в составе падающего на монокристаллическую мишень пучка электронов под углом **ψ** относительно оси пучка $\mathbf{e}_1$. В результате многократного рассеяния на атомах мишени направление его движения по отношению к оси пучка будет изменяться как функция пройденного в мишени пути $t$: $\boldsymbol{\psi} \to \boldsymbol{\psi} + \Delta\boldsymbol{\psi}(t)$.

Компоненты $\Delta\psi_\perp$, $\Delta\psi_\parallel$ угла рассеяния $\Delta\boldsymbol{\psi}$ будем описывать функцией Гаусса, меняющейся с длиной пути прохождения в мишени $t$:

$$f(\Delta\psi_\perp, \Delta\psi_\parallel, t) = \frac{1}{\pi\left(\psi_0^2 + \psi_s^2 t\right)} e^{-\frac{\Delta\psi_\perp^2 + \Delta\psi_\parallel^2}{\psi_0^2 + \psi_s^2 t}}, \qquad (7)$$

$\psi_0$ – начальная расходимость электронного пучка,

$\psi_s^2 = \frac{E_s^2}{m^2\gamma^2}\frac{1}{L_R}\left(1 + 0.038\ln\left(\frac{t}{L_R}\right)\right)^2$ – средний квадрат угла многократного рассеяния электрона на единице длины как функция пути $t$, пройденного электроном в монокристаллической мишени [13], $E_s \approx 21$ МэВ.

В результате усреднения выражения (5) для спектрально-угловой плотности ДПИ одного электрона, полагая $\psi_0 = 0$ в (7), получим:

$$\left\langle \omega\frac{d^2N^{(s)}_{\text{ДПИ}}}{d\omega d\Omega}\right\rangle_{\Delta\boldsymbol{\psi}} =$$

$$= \frac{e^2}{\pi^2}\frac{1}{L_e}\int_0^{L_e}\int_{-\infty}^{\infty}\int_{-\infty}^{\infty}\left(\frac{\Omega^{(s)}}{\Delta} - \frac{\Omega^{(s)}}{\Delta^* - \chi_0'}\right)^2 R^{(s)}_{\text{ДПИ}}\frac{1}{\pi\psi_s^2 t}\times \qquad (8)$$

$$\times\, e^{-\frac{\Delta\psi_\perp^2 + \Delta\psi_\parallel^2}{\psi_s^2 t}}\, d\Delta\psi_\perp d\Delta\psi_\parallel dt,$$

где $\Delta^*(\theta_\perp, \theta_\parallel, \psi_\perp + \Delta\psi_\perp, \psi_\parallel + \Delta\psi_\parallel) = \gamma^{-2} + (\theta_\perp - (\psi_\perp + \Delta\psi_\perp))^2 + (\theta_\parallel + (\psi_\parallel + \Delta\psi_\parallel))^2$.

По величине $t$, которая представляет путь, пройденный электроном в мишени, мы проводим интегрирование в пределах от нуля до полной длины пути электрона в мишени $L_e$.

Проанализируем влияние многократного рассеяния электронов атомами среды на спектрально-угловую плотность дифрагированного переходного излучения для различных значений энергии электрона, которая определяется Лоренц-фактором $\gamma$. Угловая плотность ПИ на передней границе мишени, согласно (5а) пропорционально следующему выражению:

$$\left(\frac{\Omega^{(s)}}{\Delta} - \frac{\Omega^{(s)}}{\Delta^* - \chi_0'}\right)^2 =$$

$$= \left(\frac{\Omega^{(s)}}{\gamma^{-2} + (\theta_\perp - \psi_\perp)^2 + (\theta_\parallel + \psi_\parallel)^2} - \right. \qquad (9)$$

$$\left. - \frac{\Omega^{(s)}}{\gamma^{-2} + (\theta_\perp - \psi_\perp)^2 + (\theta_\parallel + \psi_\parallel)^2 - \chi_0'}\right)^2.$$

Первый член в скобке соответствует полю электрона в вакууме, второй – полю электрона в монокристалле. Видно, что в случае большой энергии электронов $\left(\gamma^{-2} \ll \left|\chi_0'\right|\right)$, подавляющий вклад в угловую плотность ДПИ, а значит и ПИ, дает первое слагаемое, соответствующее полю электрона в вакууме. Так как максимум угловой плотности ДПИ соответствует углу $\theta \approx \gamma^{-1}$, то многократное рассеяние в веществе в этих условиях никак не повлияет на угловую плотность ДПИ (или ПИ), поскольку второе слагаемое ничтожно мало по сравнению с первым. Так как эксперименты по изучению свойств ПИ, ДПИ проводятся в основном при высоких энергиях $\left(\gamma^{-2} \ll \left|\chi_0'\right|\right)$, то влияние многократного рассеяния на ДПИ (или ПИ) в этом случае не существенно и считается отсутствующим.

В случае же малых энергий электронов $\left(\gamma^{-2} \geq \left|\chi_0'\right|\right)$, в выражении (9) второе слагаемое по величине будет сопоставимо с первым, что приведет практически к отсутствию ДПИ (и ПИ). Многократное рассеяние может существенно повлиять на угловую плотность ДПИ (и ПИ), поскольку приведет к уменьшению второго слагаемого в (9) и ослаблению компенсации первого слагаемого вторым. Таким образом, многократное рассеяние при малых энергиях релятивистского электрон $\left(\gamma^{-2} \gg \left|\chi_0'\right|\right)$ может на порядки увеличить угловую плотность ДПИ. Данный эффект многократного рассеяния в угловой плотности ДПИ (и ПИ) ранее никем не заявлялся и не исследовался ни теоретически, ни экспериментально.

Переходное излучение формируется в виде разности между полем электрона, которое он имел при влете в мишень, и экранированным полем электрона в среде. Многократное рассеяние может влиять только на составляющую поля волны переходного излучения, которая формируется при движении электрона в веществе мишени. В этой связи в выражении для спектрально-угловой плотности ДПИ (8), учитывающем многократное рассеяние электрона, мы ввели замену $\Delta \to \Delta^*$ только во втором слагаемом, описывающем поле электрона в материале мишени.

Усредняя выражение (8) по всем возможным начальным прямолинейным траекториям электрона в пучке, получим выражение, описывающее спектрально-угловую плотность ДПИ пучка релятивистских электронов, с учетом многократного рассеяния в монокристалле, нормированную на один электрон:

$$\left\langle \omega \frac{d^2 N^{(s)}_{\text{ДПИ}}}{d\omega d\Omega} \right\rangle_{\Delta\psi} = \frac{e^2}{\pi^2} \frac{1}{L_e} \frac{1}{\pi\psi_0^2} \times$$
$$\times \int_{-\infty}^{\infty}\int_{-\infty}^{\infty} \left[ \int_0^{L_e} \int_{-\infty}^{\infty}\int_{-\infty}^{\infty} \left( \frac{\Omega^{(s)}}{\Delta} - \frac{\Omega^{(s)}}{\Delta^* - \chi_0'} \right)^2 R^{(s)}_{\text{ДПИ}} \times \right. \tag{10}$$
$$\left. \times \frac{1}{\pi\left(\psi_0^2 + \psi_s^2 t\right)} e^{-\frac{\Delta\psi_\perp^2 + \Delta\psi_\parallel^2}{\psi_0^2 + \psi_s^2 t}} d\Delta\psi_\perp d\Delta\psi_\parallel dt \right] \times$$
$$\times e^{-\frac{\psi_\perp^2 + \psi_\parallel^2}{\psi_0^2}} d\psi_\perp d\psi_\parallel.$$

В выражении (10) излучение рассматривается в виде суммы вкладов электронов пучка с различными значениями углов падения относительно оси пучка $\boldsymbol{\psi}$, которые задаются нормированной функцией углового распределения пучка электронов. Вклад многократного рассеяния представлен добавкой к ширине распределения $\psi_0^2 \Rightarrow \psi_0^2 + \psi_s^2 t$. $\psi_0$ – начальная расходимость электронного пучка. Фактически, таким образом мы проводим усреднение угловой плотности ДПИ по расширяющемуся пучку прямолинейных траекторий излучающих электронов. Выражения (8) и (10), описывающее спектрально-угловую плотность ДПИ с учетом многократного рассеяния релятивистских электронов в монокристалле, является главным результатом настоящей работы.

Поскольку электроны в пучке возбуждают излучение не когерентно, то мы можем рассматривать влияние многократного рассеяния на угловую плотность ДПИ на примере одного излучающего электрона, пересекающего переднюю границу монокристаллической мишени вдоль оси $\mathbf{e}_1$ ($\boldsymbol{\psi} = 0$). Численные расчеты спектрально-угловой плотности ДПИ без учета многократного рассеяния проведем по формуле (5), а с учетом по формуле (8). Будем рассматривать релятивистский электрон с энергией $\gamma = 100$, пересекающий монокристалл углерода $C(111)$, с параметрами процесса: $\theta_B = 16.2°$, $\omega_B = 10900$ эВ, $\varepsilon = 1$.

На рис. 2 представлены кривые, построенные по формуле (5), описывающие спектрально-угловую плотность ДПИ при фиксированном угле наблюдения без учета многократного рассеяния. Рисунок демонстрирует рост амплитуды спектра ДПИ при увеличении толщины мишени и насыщении роста приблизительно при $L = 5$ мкм. Рассматриваемые условия показали, что такая толщина монокристалла является предельной для генерации ДПИ.

На рис. 3 представлены кривые, описывающие спектрально-угловые плотности ДПИ для различных углов наблюдения $\theta_\perp$, при $\theta_\parallel = 0$. Из рисунка видно, что спектрально-угловая плотность максимальна при угле приближенном $\theta_\perp = 6$ мрад.

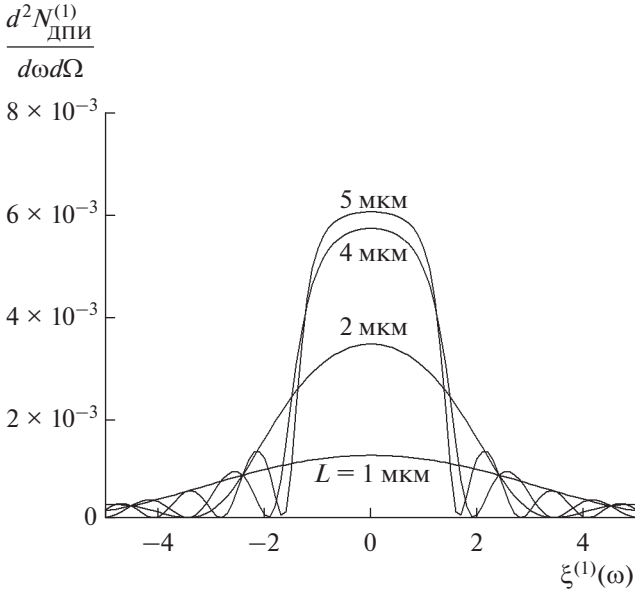


**Рис. 2.** Спектрально-угловые плотности ДПИ для различной толщины монокристалла при фиксированных углах наблюдения: $\theta_\perp = 10$, $\theta_\parallel = 0$. $\gamma = 100$.

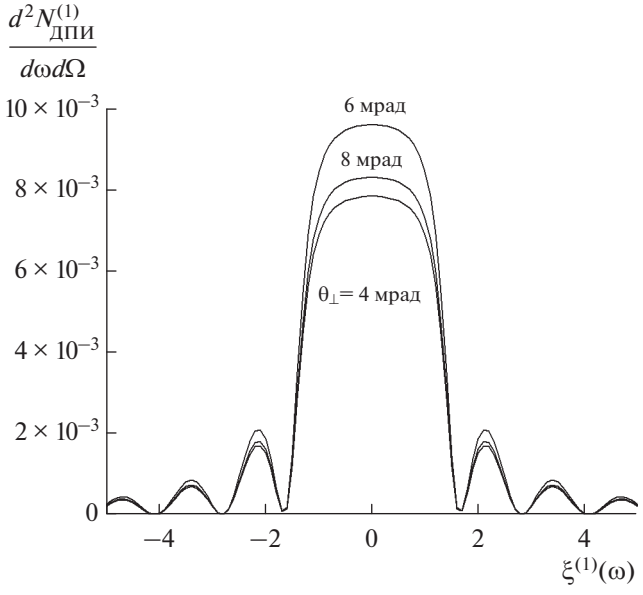


**Рис. 3.** Спектрально-угловые плотности ДПИ для различных углов наблюдения $\theta_\perp$, $\theta_\parallel = 0$. $\gamma = 100$.

На рис. 4 представлены кривые, построенные по формулам (5) и (8), которые описывают спектр ДПИ с учетом (пунктирная кривая) и без учета (сплошная кривая) многократного рассеяния электрона на атомах мишени толщиной $L = 5$ мкм и уг-

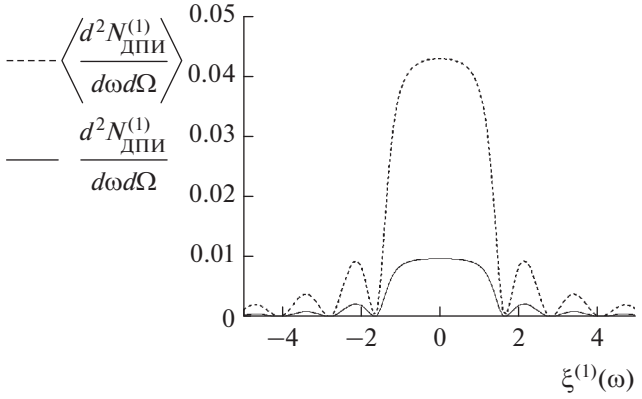


**Рис. 4.** Спектрально-угловые плотности ДПИ с учетом (пунктирная кривая) и без учета (сплошная кривая) многократного рассеяния: $\gamma = 100$, $L = 5$ мкм, $\theta_\perp = 6$ мрад.

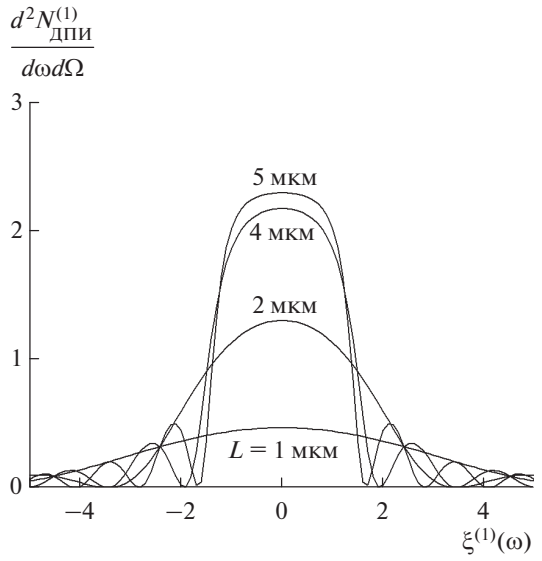


**Рис. 5.** Спектрально-угловые плотности ДПИ для различной толщины монокристалла при фиксированных углах наблюдения: $\theta_\perp = 3$ мрад, $\theta_\parallel = 0$. $\gamma = 300$.

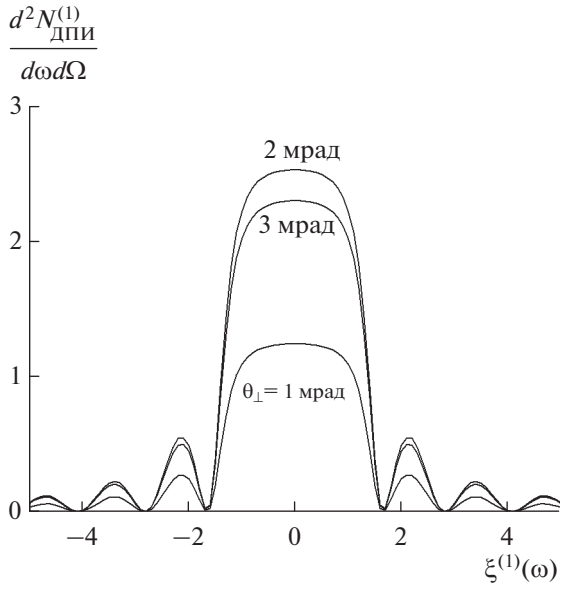


**Рис. 6.** Спектрально-угловые плотности ДПИ для различных углов наблюдения $\theta_\perp$, $\theta_\parallel = 0$. $\gamma = 300$, $L = 5$ мкм.

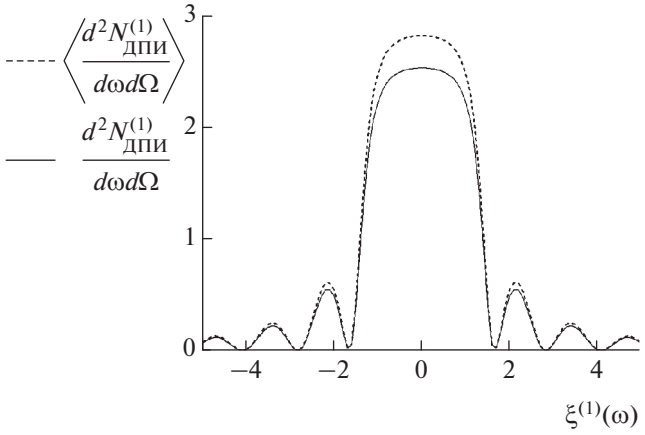


**Рис. 7.** Спектрально-угловые плотности ДПИ с учетом (пунктирная кривая) и без учета (сплошная кривая) многократного рассеяния: $\gamma = 300$, $L = 5$ мкм, $\theta_\perp = 2$ мрад.

ле наблюдения $\theta_\perp = 6$ мрад, $\theta_\parallel = 0$. Из рисунка следует, что в рассматриваемых условиях учет многократного рассеяния дает приблизительно пятикратное увеличение амплитуды спектрально-угловой плотности ДПИ по сравнению с расчетом без учета многократного рассеяния. Кривые на рис. 2–4 построены для энергии электрона, соответствующей Лоренц-фактору ($\gamma = 100$). Аналогичные кривые на рис. 5–7 построены для большей энергии электрона ($\gamma = 300$). При такой энергии электрона (рис. 7) влияние многократного рассеяния электронов на атомах среды на спектрально-угловую плотность излучения становится значительно более слабым. В случае увеличения энергии электронов $\gamma > 300$ влияние многократного рассеяния на спектрально-угловую плотность ДПИ будет пренебрежимо малым.

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В работе развита динамическая теория дифрагированного переходного излучения, генерируемого пучком релятивистских электронов в монокристаллической пластине в геометрии рассеяния Брэгга в условиях многократного рассеяния падающих частиц. Получены выражения, описывающие спектрально-угловую плотность ДПИ как с учетом, так и без учета многократного рассеяния электронов пучка атомами мишени. Исследовано влияние многократного рассеяния электрона на спектрально-угловую плотность ДПИ. Расчеты угловой спектрально-угловой плотности ДПИ демонстрируют рост угловой плотности ДПИ при увеличении толщины мишени. Главным новым результатом работы является установление факта значительного роста спектрально-угловой плотности дифрагированного переходного излучения в условиях многократного рассеяния излучающих электронов на атомах монокристаллической мишени.

Результаты данной работы могут быть полезными при постановке новых экспериментов по исследованию свойств ПРИ и ДПИ и интерпретации результатов экспериментов при небольших энергиях электронов ($\gamma \leq 100$), в которых принципиально важно правильно учитывать вклад ДПИ.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ


1. *Гинзбург В.Л., Франк И.М.* // ЖЭТФ. 1946. Т. 16. С. 15.
2. *Гинзбург В.Л., Цытович В.Н.* // Переходное излучение и переходное рассеяние. М.: Наука, 1984.
3. *Пафомов В.Е.* // Докл. АН СССР. 1960. Т. 133. № 6. С. 1315.
4. *Болотовский Б.М.* // Труды ФИАН. 1982. Т. 140. С. 95.
5. *Гарибян Г.М.* // ЖЭТФ. 1960. Т. 39. Вып. 2. С. 332.
6. *Caticha A.* // Phys. Rev. A. 1989. Т. 40. С. 4322.
7. *Baryshevsky V.* // Nucl. Instrum. Methods. Phys. Res. A. 1997. Т. 122. С. 13.
8. *Nasonov N.* // Phys. Lett. A. 1998. Т. 246. С. 148.
9. *Блажевич С.В., Носков А.В.* // ЖЭТФ. 2015. Т. 147. С. 875.
10. *Блажевич С.В., Носков А.В.* // ЖЭТФ. 2016. Т. 150. С. 643.
11. *Блажевич С.В., Бронникова М.В., Носков А.В.* // Поверхность. Рентген., синхротр. и нейтрон. исслед. 2020. № 9. С. 66.
12. *Блажевич С.В., Люшина К.С., Носков А.В.* // ЖЭТФ. 2019. Т. 155. С. 242.
13. *Partic1e Data Group, Barnett R.M. et al.* //Phys. Rev. D. 1996. V. 54. P. 1.


# Effect of Multiple Scattering on the Spectral-Angular Density of Diffracted Transition Radiation


**S. V. Blazhevich[1], A. S. Gorlov[2], A. V. Noskov[1, 2, *], A. E. Fedoseev[1]**

*[1]Belgorod State National Research University, Belgorod, 308015 Russia*

*[2]Belgorod State Technological University named after V.G. Shukhov, Belgorod, 308012 Russia*

**e-mail: noskovbupk@mail.ru*



The paper investigates the diffracted transition radiation of a relativistic electron crossing a single-crystal plate in the Bragg scattering geometry. Expressions are obtained that describe the spectral-angular density of diffracted transition radiation with and without allowance for multiple scattering of a relativistic electron in a single-crystal plate. The influence of multiple scattering on the spectrum of diffracted transition radiation of a relativistic electron is shown.



**Keywords:** multiple scattering, diffracted transition radiation, relativistic electron.

УДК 537.533:537.533.8:537.533.35

# СОВРЕМЕННАЯ РАСТРОВАЯ ЭЛЕКТРОННАЯ МИКРОСКОПИЯ. 1. ВТОРИЧНАЯ ЭЛЕКТРОННАЯ ЭМИССИЯ

**© 2023 г. Ю. А. Новиков***

*Институт общей физики им. А.М. Прохорова РАН, Москва, 119991 Россия*

**e-mail: nya@kapella.gpi.ru*

Поступила в редакцию 22.09.2022 г.
После доработки 17.11.2022 г.
Принята к публикации 17.11.2022 г.

Развитие современных технологий, в том числе нанотехнологии, основано на применении методов диагностики объектов, используемых в технологиях процессах. Для этой цели наиболее перспективными являются методы, реализованные в растровом электронном микроскопе. При этом одним из основных методов является измерение линейных размеров рельефных структур микронного и нанометрового диапазонов, используемых в микро- и наноэлектронике. В основе работы растрового электронного микроскопа лежит вторичная электронная эмиссия твердого тела. Однако практически все известные закономерности вторичной электронной эмиссии были получены на поверхностях, рельефом которых пренебрегалось. Приведен обзор теоретических и экспериментальных материалов исследования вторичной электронной эмиссии твердого тела на безрельефных поверхностях. Практически все известные закономерности проверены в экспериментах и получили свое физическое объяснение. Однако применение вторичной электронной эмиссии в растровой электронной микроскопии, используемой в микро- и наноэлектронике и нанотехнологиях, требует знания закономерностей, которые проявляются именно на рельефных поверхностях. Демонстрируется, какие закономерности можно применять в растровом электронном микроскопе для измерения линейных размеров рельефных структур. Делается вывод о необходимости изучения влияния рельефа поверхности твердого тела на вторичную электронную эмиссию.

**Ключевые слова:** растровый электронный микроскоп, растровая электронная микроскопия, вторичная электронная эмиссия, механизмы эмиссии, ионизационный механизм, эффект стряхивания, вторичные медленные электроны, обратно рассеянные электроны, метод Монте-Карло.

**DOI:** 10.31857/S102809602305014X, **EDN:** AMQMFC

## ВВЕДЕНИЕ

Растровая электронная микроскопия получила широкое распространение в науке, технике и технологии, включая нанотехнологии [1–6]. Это обусловлено тем, что современная промышленность выпускает растровые электронные микроскопы (РЭМ) высокого качества. Кроме того, с использованием РЭМ можно реализовать большое количество разных методов исследования – как качественных, так и количественных [1–6]. Управление РЭМ от компьютера и цифровизация получаемой информации (особенно перевод изображений в цифровую форму) позволило осуществить автоматизацию обработки и анализа получаемой на РЭМ информации, что упростило и ускорило работу на РЭМ.

Однако все методы, реализованные на РЭМ, находятся на разных стадиях развития. Одни доведены до практически полной автоматизации измерений (например, рентгеновский анализ химического состава вещества [1–5]). Другие до недавнего времени являлись только наблюдательными или, в крайнем случае, полуколичественными (например, измерение линейных размеров рельефа структур). В связи с быстрым прогрессом в области микроэлектроники, а потом и наноэлектроники [7] потребовались методы измерения линейных размеров рельефа структур в микрометровом и нанометровом диапазонах [7–13]. В результате выполненных исследований метод измерения линейных размеров на РЭМ резко повысил свое качество. Он перешел из полуколичественного метода в высокоточный количественный метод измерения на РЭМ линейных размеров рельефных структур с размерами, лежащими в микрометровом и нанометровом диапазонах [14, 15]. Метод был доведен до практически полной автоматизации и встраивания в технологическую линию производства микросхем [16–19].

Для превращения РЭМ из наблюдательного прибора в области измерения линейных размеров

рельефа структур в измерительный прибор необходимо было выполнить ряд работ.

1) Нужны удобные для работы на РЭМ тест-объекты, обладающие рельефом и размерами, пригодными для калибровки РЭМ.

2) РЭМ может работать в двух режимах – высоковольтном режиме при энергии электронов зонда $E > 2$ кэВ и низковольтном режиме при $E \leq 2$ кэВ. Необходимо выбрать режим работы РЭМ, в котором будут проводить калибровку РЭМ и измерение размеров рельефа структур.

3) Для высоковольтного режима нужно выбрать способ регистрации вторичных электронов – вторичных медленных электронов или обратно рассеянных электронов.

4) Необходимо разработать методы калибровки РЭМ с помощью имеющихся тест-объектов. Под калибровкой будем подразумевать не только определение увеличения РЭМ (как это было ранее), но и измерение всех параметров РЭМ, влияющих на результаты измерений линейных размеров в выбранных режимах работы РЭМ и всеми способами регистрации вторичных электронов.

5) Нужно разработать методы измерения линейных размеров рельефных структур (включая измерения в технологическом процессе производства микросхем).

6) Необходимо исследовать механизмы генерации вторичных электронов первичными электронами, взаимодействующими с рельефными поверхностями. Дело в том, что все закономерности вторичной электронной эмиссии исследовали на поверхностях, рельефом которых пренебрегали. В то же время с помощью РЭМ исследуют именно рельефные поверхности. Переносить закономерности, полученные на “безрельефных” поверхностях, на рельефные поверхности не вполне корректно.

7) Нужно найти математические выражения, связывающие параметры РЭМ и параметры изображений, получаемых на РЭМ, с параметрами рельефных структур, что даст возможность осуществлять измерение линейных размеров рельефа структур.

8) Надо создать модели формирования изображений в РЭМ, работающих во всех режимах, что позволит научно обосновать математические выражения, связывающие параметры РЭМ и параметры изображений с параметрами рельефных структур, и позволит верифицировать созданные методы измерения размеров рельефных структур.

9) Необходимо обеспечить прослеживаемость созданных методов измерений линейных размеров рельефных структур от первичного эталона длины – метра, до измеряемого размера, что обеспечит единство измерений в микрометровом и нанометровом диапазонах линейных размеров рельефа структур.

В настоящее время все необходимые тест-объекты и методы калибровки РЭМ и измерений на РЭМ разработаны. Исследования вторичной электронной эмиссии (ВЭЭ) рельефных поверхностей проведены. Получены математические выражения, связывающие параметры РЭМ и параметры изображений с параметрами рельефных структур. Созданы модели формирования изображений в РЭМ, работающих во всех режимах работы. Но, в силу обстоятельств быстрого развития данного направления науки, техники и технологий, результаты исследований опубликованы в большем количестве журналов и трудах международных конференций, доступ к которым ограничен в силу разных причин. В связи с этим необходим обзор современного состояния растровой электронной микроскопии, используемой в качестве метода измерения линейных размеров рельефа структур, широко применяемого в производстве микро- и наноэлектроники. Однако большой объем материалов не позволяет описать все это в одном обзоре. Поэтому было принято решение написать серию обзоров, связанных общим названием и представляющих современное состояние растровой электронной микроскопии в области измерения линейных размеров рельефных структур в микрометровом и нанометровом диапазонах.

Настоящая статья представляет собой первый обзор из серии, посвященный закономерностям вторичной электронной эмиссии – твердо установленным законам и механизмам взаимодействия электронов с твердым телом, на которых основана растровая электронная микроскопия. Эти закономерности позволяют решить ряд проблем растровой электронной микроскопии даже без подробного изучения формирования изображений рельефных структур в РЭМ, работающем в некоторых режимах регистрации вторичных электронов.

## ЗАКОНОМЕРНОСТИ ВТОРИЧНОЙ ЭЛЕКТРОННОЙ ЭМИССИИ

В основе работы РЭМ лежит ВЭЭ [20]. Она представляет собой явление испускания электронов поверхностью твердого тела, возникающее при воздействии на твердое тело первичных (падающих) электронов. ВЭЭ можно наблюдать у любых веществ [21, 22]. ВЭЭ имеет место, как на поверхности, обращенной к падающим электронам (ВЭЭ на отражение) [2, 3, 21–25], так и на противоположной поверхности твердого тела после прохождения электронами сквозь вещество [22, 25, 26]. Последнее реализуют обычно при облучении электронами тонких пленок (ВЭЭ “на прострел”) [26–30].

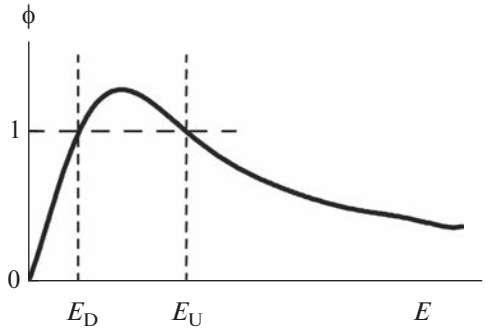


**Рис. 1.** Схематичное изображение зависимости коэффициента ВЭЭ от энергии первичных электронов.

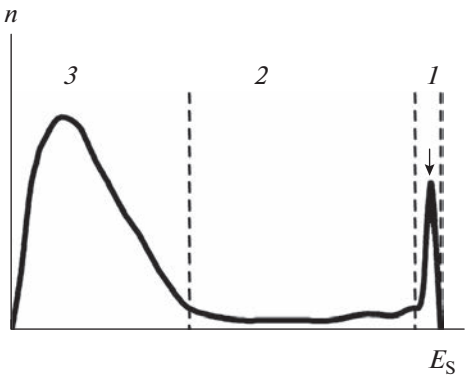


**Рис. 2.** Схематичное изображение спектра электронов $n(E_S)$, испущенных в направлении, обратном по отношению к движению первичных электронов, при энергии первичных электронов $E$ (отмечено стрелкой).

*Коэффициент вторичной электронной эмиссии*

Одним из основных параметров, характеризующих ВЭЭ, является коэффициент вторичной эмиссии:

$$\phi = I_S/I_P. \quad (1)$$

Здесь $I_P$ – количество падающих на поверхность первичных электронов, а $I_S$ – количество испущенных вторичных электронов (ВЭ). На рис. 1 приведено схематическое изображение зависимости ϕ от энергии первичных электронов $E$. Она имеет максимум, положение которого лежит в диапазоне 0.2–2.5 кэВ [21, 31–46]. Кроме того, величина коэффициента ВЭЭ может принимать значение $\phi > 1$, т.е. число испущенных веществом электронов может превосходить количество падающих электронов [2, 3] в некотором диапазоне энергий $E_D < E < E_U$. На этом принципе работает ряд приборов таких, как фотоэлектронные умножители и их разновидность – микроканальные пластины (например, [24]), а также это свойство необходимо учитывать при работе некоторых высокочастотных электровакуумных устройств [24].

Зависимость $\phi(E)$ имеет более сложную форму, чем представленная на рис. 1. При возникновении ВЭЭ в некоторых веществах можно наблюдать "тонкую структуру" $\phi(E)$ [31, 45, 46] – набор локальных минимумов и максимумов. У других веществ ВЭЭ имеет место при энергии первичных электронов меньше работы выхода электрона из вещества [47–52]. ВЭЭ имеет место даже тогда, когда энергии первичных электронов явно недостаточно для генерации вторичных электронов [45]. В ряде случаев первичный электрон играет роль спускового механизма эмиссии электронов, а энергия, за счет которой эта эмиссия идет, берется из других источников [53]. Такую эмиссию называют экзоэмиссией.

ВЭЭ сильно зависит от состояния поверхности, испускающей электроны. Так в работе [52] отмечено, что необезгаженные материалы эмиттируют значительно больше вторичных электронов, чем прошедшие термообработку. В работах [54, 55] высказано предположение о влиянии поверхностных электронных состояний на ВЭЭ. Так как количество и тип поверхностных электронных состояний зависит от истории создания образца [56], то это может приводить к неоднозначным результатам экспериментов. В связи с этим на практике при исследовании ВЭЭ принимают специальные меры для ослабления влияния поверхности (в частности отжиг образца или напыление пленок в высоком вакууме) [21]. Отметим, что экзоэмиссия [53] существенно определяется состоянием поверхности твердого тела.

*Спектр вторичных электронов*

Одной из основных закономерностей ВЭЭ является спектр вторичных электронов, испущенных в направлении, противоположном распространению пучка первичных электронов [1, 20]. На рис. 2 схематично изображено распределение ВЭ $n$ по энергии ВЭ $E_S$ при энергии первичных электронов $E$. Спектр представляет собой довольно сложную картину, которая определяется механизмами генерации ВЭ. В РЭМ в высоковольтном режиме осуществляется регистрации так называемых "вторичных медленных электронов" и "обратно рассеянных электронов". Это разделение основано на использовании разных типов детекторов вторичных электронов и тем, что спектре вторичных электронов можно выделить три резко различающиеся области [1, 20].

В область *1* дают вклад электроны, которые в результате взаимодействия с веществом, потеряли очень малую часть своей энергии. Обычно это однократно упруго рассеянные обратно (первоначальному движению) первичные электроны.

Во область *2* дают вклад электроны с энергией меньшей (часто гораздо меньшей) энергии пер-

вичного электрона. Это первичные и вторичные электроны, испытавшие многократное упругое и неупругое рассеяние, а также электроны из некоторых других процессов рождения электронов, которые будут рассмотрены ниже.

В область *3* входят только те ВЭ, энергия которых меньше 50 эВ [1–3, 21]. Эта граница введена эмпирически. Она определяется тем, что в ее области заканчивается склон максимума низкоэнергетичных электронов ($E_S < 50$ эВ), испущенных практически из всех твердых тел. Эксперименты по измерению спектров ВЭ при разных энергиях первичных электронов $E$ показали, что для большинства веществ положение максимума в спектре лежит в диапазоне 1–4 эВ [21]. Кроме того, при $E \geq 0.5$ кэВ положение максимумов спектра и их полуширины практически не зависят от энергии первичных электронов [57].

Необходимо отметить, что реальные спектры имеют более сложную структуру [1]. Некоторые особенности спектра $n(E_S)$ будут описаны ниже. Однако эти особенности не оказывают существенного влияния на применение РЭМ в научных, технических и технологических работах.

## МЕХАНИЗМЫ ГЕНЕРАЦИИ ВТОРИЧНЫХ ЭЛЕКТРОНОВ

В настоящее время известно достаточно много физических эффектов, приводящих к эмиссии электронов из твердого тела в вакуум под воздействием налетающего электрона. К ним можно отнести упругое рассеяние электронов (например, [58–60]), испускание электронов атомом облучаемого вещества за счет ионизационных потерь [58–60] или эффекта Оже [4, 61], а также двух- или многоступенчатые процессы (например, идущие через образование квантов электромагнитного излучения с последующей генерацией этими квантами вторичных электронов [59]). Большой вклад во ВЭЭ дает эффект эмиссии электронов из поверхностных электронных состояний налетающим электроном при его движении из вакуума в твердое тело [62, 63], при движении налетающих электронов через поверхность из твердого тела в вакуум такой эмиссии не происходит.

Рассмотрим некоторые эффекты и закономерности, которые можно использовать при анализе формирования изображений рельефных структур в РЭМ.

### *Упругое рассеяние электронов*

Упругое рассеяние электронов является одним из главных механизмов генерации электронов, покидающих твердое тело. При этом различают 4 вида таких механизмов [59]: однократное упругое рассеяние электронов; кратное упругое рассеяние электронов; многократное упругое рассеяние электронов; диффузия электронов. Рассмотрим более подробно эти механизмы.

**Однократное упругое рассеяние электронов.** Наиболее простым механизмом генерации ВЭ является однократное упругое рассеяние. Оно заключается в однократном взаимодействии налетающего электрона с атомным ядром рассеивающего вещества, после чего рассеянный первичный электрон покидает вещество и выходит в вакуум. Дифференциальное сечение такого процесса определяется формулой Резерфорда (поэтому эти электроны часто называют резерфордовскими). Для рассеяния электронов в веществе с учетом эффекта экранирования электрического поля атомного ядра дифференциальное сечение такого рассеяния, полученное в первом борновском приближении, имеет вид [60]:

$$d\sigma/d\Omega = [Z(Z+1)e^4]/[16E^2(\sin^2(\theta/2)+\beta^2)], \quad (2)$$

где $e$ – заряд, а $E$ – энергия рассеиваемого электрона, $\theta$ – угол рассеяния электронов, $Z$ – атомный номер химического элемента, из которого состоит вещество, $\beta$ – параметр экранирования электрического поля атомного ядра [60], на котором происходит рассеивание:

$$\beta = 5.43Z^{2/3}/E. \quad (3)$$

В формуле (3) энергия электрона $E$ указана в эВ.

На рис. 3 приведена зависимость плотности вероятности вылета электрона под углом $\theta$ относительно первоначального движения при его рассеянии на атомах кремния для трех энергий первичных электронов $E$ = 1, 5 и 30 кэВ (кривые *1*, *2* и *3* соответственно):

$$P(\theta) = (d\sigma/d\Omega)/\sigma. \quad (4)$$

Здесь $\sigma$ – полное сечение однократного упругого рассеяния:

$$\sigma = \int (d\sigma/d\Omega)d\Omega = [\pi e^4 Z(Z+1)]/[4E^2\beta(\beta+1)], \quad (5)$$

Хотя за счет однократного обратного упругого рассеяния электроны могут выйти из твердого тела и дать вклад во вторичную электронную эмиссию, однако вероятность такого процесса достаточно мала (рис. 3).

Большой вклад в ВЭЭ однократное упругое рассеяние может дать в экспериментах “на прострел”, когда ВЭ вылетают в направлении движения первичного пучка. Стоит отметить, что для этого вещество должно представлять собой тонкую пленку толщиной много меньше длины свободного пробега $\lambda$ первичного электрона в веществе мишени, которую можно определить выражением для вещества сложного состава:

$$\lambda = (N_A\rho\sum C_i\sigma_i/A_i)^{-1}, \quad (6)$$

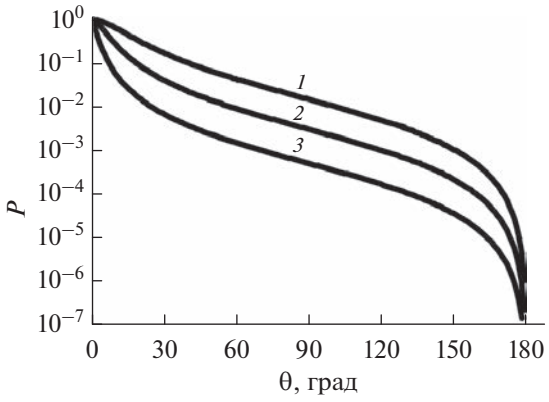


**Рис. 3.** Зависимость плотности вероятности вылета электронов из кремния под углом θ относительно их первоначального движения при $E$ = 1 (*1*), 5 (*2*) и 30 кэВ (*3*).

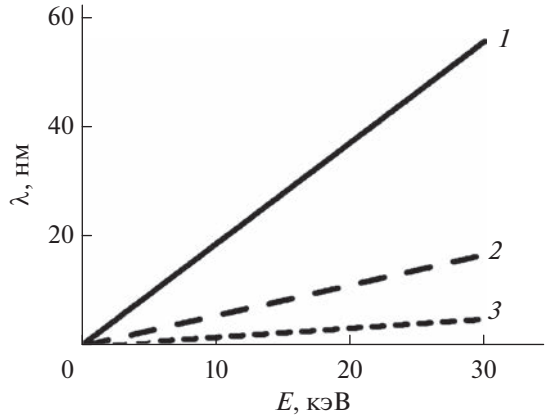


**Рис. 4.** Зависимость длины свободного пробега от энергии электронов в кремнии (*1*), хроме (*2*) и золоте (*3*).

где $N_A$ – число Авогадро, ρ – плотность вещества, $A_i$ – атомный вес, $C_i$ – удельная концентрация атомов $i$-го сорта, из которых состоит рассеивающее вещество, а $\sigma_i$ – полное сечение однократного упругого рассеяния электронов на этих атомах, рассчитываемое по формуле (5). На рис. 4 приведена зависимость длины свободного пробега от энергии электронов для трех веществ: кремния, хрома и золота (кривые *1*, *2* и *3* соответственно). Для энергий первичных электронов меньше 30 кэВ в рассмотренных веществах длина свободного пробега $\lambda < 50$ нм. Это означает, что для пленок толщиной больше 50 нм вклад однократного упругого рассеяния во вторичную электронную эмиссию "на прострел" очень мал.

Таким образом, однократное упругое рассеяние электронов в толстых образцах (ВЭЭ "на прострел") и под большими углами (ВЭЭ на отражение), для любых толщин дает малый вклад во вторичную электронную эмиссию.

Вклад однократного упругого обратного рассеяния электронов осуществляется в область спектра ВЭ *1* (рис. 2), и имеет вид узкого максимума шириной порядка $Em_e/M_N$, где $E$ – энергия налетающего электрона, $m_e$ – масса электрона, а $M_N$ – масса атомного ядра. Для кремния и энергии первичных электронов меньше 100 кэВ эта ширина имеет значение меньше 1 эВ. Ширина канала многоканальной системы регистрации электронов много больше ширины максимума резерфордовских электронов, а вероятность рассеяния электронов в обратную полусферу очень мала (рис. 3). Поэтому на экспериментально измеренных спектрах область спектра ВЭ *1* обычно не видна.

**Кратное упругое рассеяние электронов.** Кратное упругое рассеяние электронов занимает промежуточную область между однократным и многократным рассеянием [59]. Его нижняя граница представляет собой двукратное взаимодействие налетающего электрона с атомами вещества. Верхняя граница явно неопределена. Обычно за верхнюю границу кратного рассеяния принимают значение среднего числа упругих столкновений, равное 20 [59].

Условием возникновения вторичной электронной эмиссии за счет кратного рассеяния электронов является вылета электрона из вещества после нескольких актов однократного рассеяния (от 2 до 20). Теория кратного рассеяния электронов до настоящего времени не разработана, хотя существуют некоторые предложения для учета этого вида рассеяния [25]. Наиболее просто кратное рассеяние электронов можно учесть с помощью моделирования взаимодействия электронов с веществом по методу Монте-Карло.

Электрон, претерпевший кратное рассеяние, дает вклад в область спектра вторичных электронов *2* (рис. 2). Это обусловлено тем, что кратное упругое рассеяние электронов сопровождается потерями энергии за счет различных неупругих процессов.

**Многократное упругое рассеяние электронов.** Многократное упругое рассеяние электронов отличается от кратного практически только тем, что количество актов рассеяния настолько большое, что удается получить формулы, позволяющие проводить достаточно точные расчеты этого вида рассеяния [58, 59]. В работе [59] приведен краткий обзор теоретических и экспериментальных результатов исследования многократного упругого рассеяния электронов. В качестве теории многократного рассеяния (среднее число соударений $n > 20$) использована теория Мольера [59], справедливая для не очень больших средних углов многократного рассеяния электронов $\bar{\theta} < 20°$.

**Таблица 1.** Табулированные значения параметра $B$ в зависимости от числа рассеяний $n$

| $\lg n$ | 1 | 2 | 3 | 4 | 5 | 6 | 7 | 8 | 9 |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| $B$ | 3.36 | 6.29 | 8.93 | 11.49 | 13.99 | 16.46 | 18.90 | 21.32 | 23.71 |

**Таблица 2.** Табулированные значения функций $F_1(\vartheta)$ и $F_2(\vartheta)$

| $\vartheta$ | $F_1(\vartheta)$ | $F_2(\vartheta)$ |
|---|---|---|
| 0.0 | 0.8456 | 2.49 |
| 0.2 | 0.700 | 2.07 |
| 0.4 | 0.343 | 1.05 |
| 0.6 | –0.073 | –0.003 |
| 0.8 | –0.306 | –0.606 |
| 1.0 | –0.528 | –0.636 |
| 1.2 | –0.477 | –0.305 |
| 1.4 | –0.318 | 0.052 |
| 1.6 | –0.147 | 0.243 |
| 1.8 | 0.000 | 0.238 |
| 2.0 | 0.080 | 0.131 |
| 2.2 | 0.106 | 0.020 |
| 2.4 | 0.101 | –0.046 |
| 2.6 | 0.082 | –0.064 |
| 2.8 | 0.062 | –0.055 |
| 3.0 | 0.045 | –0.036 |
| 3.2 | 0.033 | –0.019 |
| 3.5 | 0.0206 | 0.0052 |
| 4 | 0.0105 | 0.0011 |
| 5 | $3.82 \times 10^{-3}$ | $0.836 \times 10^{-3}$ |
| 6 | $1.74 \times 10^{-3}$ | $0.345 \times 10^{-3}$ |
| 7 | $0.91 \times 10^{-3}$ | $0.157 \times 10^{-3}$ |

Согласно Мольеру [59] число соударений **n** можно определить из выражения

$$\lg n = 8.215 + \lg\left(s\gamma^2 \Big/ \left[AZ^{2/3}(1.13 + 376\gamma^2)\right]\right), \quad \gamma = \alpha Z/\beta, \quad \beta = v/c, \tag{7}$$

где $\alpha$ – постоянная тонкой структуры, $v$ – скорость электрона, $c$ – скорость света, $Z$ – атомный номер, $A$ – атомный вес, а $s$ – поверхностная плотность рассеивающего вещества в г/см$^2$. Вероятность рассеяния электрона с энергией $E$ на угол $\theta$ в телесный угол $d\Omega \approx 2\pi d\theta$ при прохождении пленки толщиной $d$, состоящей из однокомпонентного вещества, определяется выражением

$$P_M(\theta)2\pi d\theta = (2\exp(-\vartheta^2) + F_1(\vartheta)/B + F_2(\vartheta)/B^2 + \ldots)\vartheta d\vartheta, \quad \vartheta = \theta/[\chi B^{1/2}], \tag{8}$$
$$\chi(\text{град}) = [44.8Z(s/A)^{1/2}]/\left[(E + m_e c^2)/(m_e c^2) - (m_e c^2)/(E + m_e c^2)\right].$$

Здесь $E$ – энергия, а $m_e$ – масса электрона, $c$ – скорость света; $\vartheta$ – угол рассеяния электрона в системе центра масс. Параметр $B$ слабо зависит от среднего числа актов рассеяния. Его значение протабулировано в работе [59] (табл. 1), так же, как и значения функций $F_1(\vartheta)$ и $F_2(\vartheta)$ (табл. 2). Среднее значение угла рассеяния электрона в теории Мольера определяется выражением

$$\bar{\theta} = \pi\chi B^{1/2}/2\left(1 + 0.982/B + 0.117/B^2 + \ldots\right). \tag{9}$$

Сравнение результатов теории Мольера и эксперимента, приведенное в работе [59], показало их хорошее совпадение в той области, где применение теории Мольера обосновано. Кроме того, из выражения (8) следует, что при не очень больших углах $\theta$ (<20°) достаточно хорошо работает приближение квадратично-экспоненциальной зависимости плотности вероятности рассеяния электрона на угол $\theta$.

Аналогичная квадратично-экспоненциальная зависимость была получена и в работе [64], где приведено выражение для пространственного распределения плотности вероятности многократного рассеяния электронов в однокомпонентном веществе, полученное с использованием уравнения Больцмана,

$$P(r, z) = [3\Lambda\exp([-3\Lambda r^2]/[4z^3])/[4\pi z^3]. \tag{10}$$

Здесь $z$ – глубина, на которой рассчитывается распределение, $r$ – расстояние от прямой линии, описывающей движение первичного электрона, $\Lambda$ – транспортная длина пробега электрона

$$\Lambda(\text{нм}) = [5.12 \times 10^{-4} E^2 A]/\left[\rho Z^2 \ln(0.725E^{1/2}/Z^{1/3})\right], \tag{11}$$

где $A$ – атомный вес, $Z$ – атомный номер, а $\rho$ – плотность облучаемого вещества в г/см$^3$, $E$ – энергия электрона в эВ.

Отметим, что в разных работах величину $\Lambda$ называют по-разному. Например, в [60] она называется длина потерь импульса, в [58] – средняя длина свободного пробега.

В соответствии с выражением (10) пучок электронов радиуса $r_0$, имеющий первоначальное квадратично-экспоненциальное распределение электронов по радиусу, после прохождения пленки толщиной $d$ будет иметь также квадратично-

экспоненциальное распределение с радиусом пучка, определяемым выражением [64]

$$r_d^2 = r_0^2 + 4d^3/[3\Lambda]. \quad (12)$$

Метод Монте-Карло также позволяет достаточно просто учесть многократное рассеяние электронов в веществах сложного состава и формы. Однако в связи с тем, что обычно одновременно с упругим рассеянием происходят неупругие потери энергии электроном, то отдельно упругое многократное рассеяние в методе Монте-Карло не используется.

Вклад в спектр вторичных электронов многократно рассеянные электроны дают в область *2* (рис. 2). Это связано с тем, что многократное рассеяние электронов сопровождается неупругими потерями, приводящими к значительному изменению энергии первичного электрона.

**Диффузия электронов.** При больших средних углах рассеяния $\bar{\theta} > 60°$ ($\cos\bar{\theta} < 0.5$) [59, 65] наступает диффузионная стадия рассеяния электронов. Соответствующая теория была разработана Бете [65]. Согласно Бете, угловое распределение электронов в области диффузии можно представить в виде

$$P_D(\theta)/P_D(\theta = 0) = (0.717 + \cos\theta)\cos\theta. \quad (13)$$

Экспериментальные исследования в области перехода от многократного рассеяния электронов к диффузии приведены в работе [59].

При рассмотрении диффузионной стадии рассеяния электронов необходимо помнить, что диффузия наступает при практически полной потере электроном его первоначальной энергии путем неупругих столкновений электронов с атомами рассеивающего вещества. Поэтому вклад диффузионных электронов в спектр вторичных электронов (рис. 2) осуществляется в область спектра *3*.

### *Энергетические потери электронов*

При прохождении через вещество электрон теряет свою энергию. Различают два вида таких потерь. Один из них связан с упругим рассеянием электронов на атомах вещества. Этот вид энергетических потерь очень мал из-за большой разности масс электрона и атомного ядра. Другой вид потерь энергии связан с неупругим взаимодействием налетающего электрона с рассеивающими атомами, которое приводит к возбуждению атомов или их ионизации по разным механизмам, возникновению тормозного излучения электронов и характеристического излучения возбужденных атомов облучаемого вещества.

Однако возможны еще два эффекта генерации вторичных электронов. Это двухступенчатые процессы. На первом этапе образуется квант электромагнитного излучения, а на втором этапе фотон генерирует вторичный электрон за счет фото- или комптон-эффекта. Теории этих вторичных эффектов хорошо разработаны, что позволяет проводить расчеты двухступенчатых процессов с достаточно высокой точностью. Вклад этих эффектов в спектр вторичных электронов (рис. 2) осуществляется в область спектра *2*.

**Ионизационные потери электронов.** Основной вклад в энергетические потери электронов при энергии первичных электронов меньше 100 кэВ дают ионизационные потери [59, 60]. Для вещества сложного состава эти потери описываются в первом борновском приближении формулой Бете, которую запишем в виде [60]

$$dE/dX = 2\pi e^4 \rho N_A / E \sum C_i Z_i \ln(1.166E/J_i)/A_i, \quad (14)$$

где $e$ – заряд, а $E$ – энергия рассеиваемого электрона, $N_A$ – число Авогадро, $\rho$ – плотность рассеивающего вещества, $A_i$ – атомный вес, $Z_i$ – атомный номер, $C_i$ – удельная концентрация, а $J_i$ – средний ионизационный потенциал атомов $i$-го сорта [60], из которых состоит это вещество,

$$J_i(\text{эВ}) = 11.5Z_i. \quad (15)$$

Для кремния величина среднего ионизационного потенциала составляет 161 эВ.

Необходимо отметить, что обычно в формуле Бете используют знак минус (“–”) для указания того, что формула описывает именно потери энергии электроном. Однако, такое представление приводит к ряду трудностей при иллюстрации данной зависимости, появлению особенностей в написании формул, использующих для расчетов ионизационные потери электронов, а также к появлению двусмысленностей при описании потерь энергии. Поэтому предлагается устранить все эти трудности и противоречия и использовать для описания энергетических потерь формулу Бете в виде (14) (без знака минус).

На рис. 5 приведена зависимость $dE/dX$ (по формуле (14)) от энергии $E$ налетающего электрона (рис. 5а при $E < 3$ кэВ; рис. 5б при 1 кэВ $< E <$ $< 30$ кэВ) для трех веществ: кремния, хрома и золота (кривые *1*, *2* и *3* соответственно). При $E$ больше 10 кэВ энергетические потери для кремния лежат в диапазоне 1.6–4.0 эВ/нм (именно потери энергии, а не приобретение энергии). Используя эти данные, получим, что на длине свободного пробега электрона в кремнии его средние ионизационные потери равны 74–85 эВ. Это составляет около 50% от среднего ионизационного потенциала кремния.

Таким образом, при $E$ больше 10 кэВ в среднем на каждые два акта упругого рассеяния первичного электрона в кремнии в результате ионизации генерируется один электрон, который дает вклад

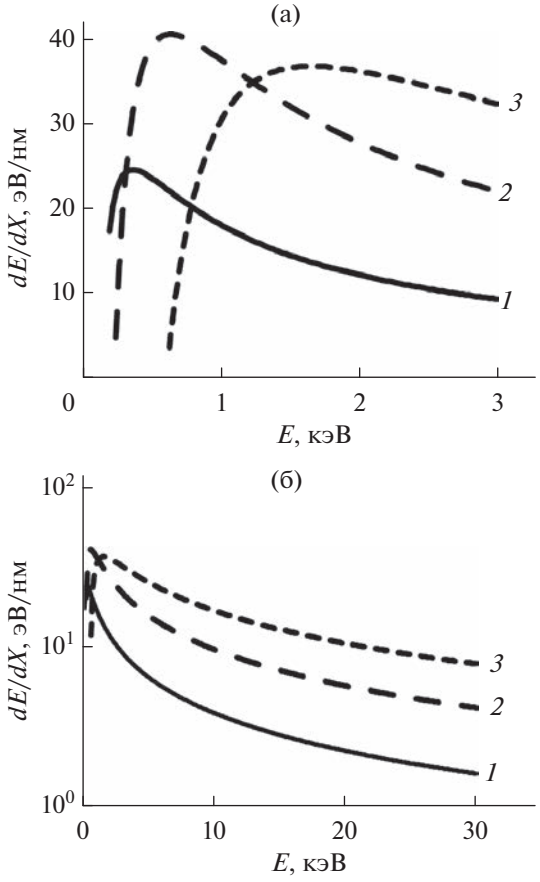


**Рис. 5.** Зависимость ионизационных потерь электронов от их энергии $E$ для кремния (*1*), хрома (*2*) и золота (*3*) в областях энергий $E < 3$ кэВ (а) и $E < 30$ кэВ (б).

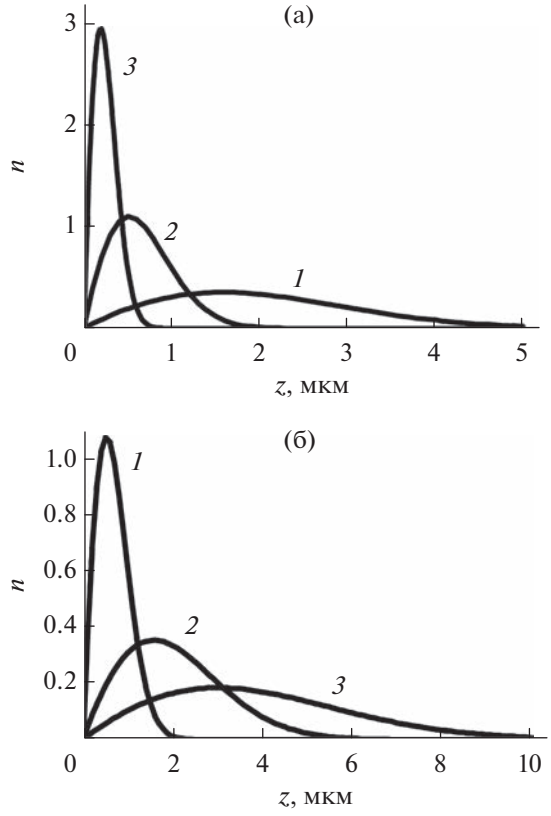


**Рис. 6.** Распределение замедлившихся электронов по глубине для кремния, хрома и золота (кривые *1*, *2* и *3* соответственно) при $E = 20$ кэВ (а) и для кремния (б) при энергиях $E = 10$ (*1*); 20 (*2*) и 30 кэВ (*3*).

в области *2* и *3* спектра вторичных электронов (рис. 2).

**Пробеги электронов в веществе.** Пробег электрона в веществе практически полностью определяется его ионизационными потерями. Однако в силу сложного характера движения электрона не существует однозначного определения величины пробега. В работе [66] получена эмпирическая функция распределения электронов в мишени по глубине $z$:

$$n_e(z) = mz^{m-1}\exp\left(-\left[z/z_0\right]^m\right)/z_0^m, \quad (16)$$

$$z_0 = R_z/\Gamma\left(1/m + 1\right). \quad (17)$$

Здесь $\Gamma$ – гамма-функция, параметр $m \sim 1.9$,

$$R_z = 40E^{1.6}/\rho. \quad (18)$$

В случае если плотность вещества $\rho$ взята в г/см$^3$, а энергия электронов $E$ – в кэВ, то значение $R_z$ будет в нм.

Величина $R_z$, определяемая формулой (18), получила название глубины остановки электронов. Она не совпадает с максимумом распределения, который достигается на глубине:

$$z_m = z_0\left(\left[m - 1\right]/m\right)^{1/m}. \quad (19)$$

На рис. 6 приведены примеры распределения электронов по глубине в кремнии, хроме и золоте при $E = 20$ кэВ (рис. 6а, кривые *1*, *2* и *3* соответственно) и в кремнии при $E = 10$, 20 и 30 кэВ (рис. 6б, кривые *1*, *2* и *3* соответственно). Во всех случаях число электронов, достигающих глубин в несколько мкм, очень мало. Это означает, что при толщинах пленок больше этих значений вклад во вторичную электронную эмиссию возможен только на отражение.

Одновременный учет упругого рассеяния электронов и их неупругих потерь в веществе достаточно сложен. Существует ряд работ, в которых делают попытки аналитического решения этой задачи для целей электронной литографии. Обзор таких работ можно найти в [60]. Однако эту задачу решить достаточно просто в случае использования моделирования процесса взаимодействия электронов с твердым телом по методу Монте-Карло (например, [60, 67]). Как показывает моделирование, траектории движения элек-

тронов в твердом теле имеют сложную форму. В связи с этим существует несколько определений пробега электрона в веществе.

Пробегом Бете называют величину

$$R_{\text{B}} = \int_0^E dE/[dE/dX], \qquad (20)$$

соответствующую полному замедлению электрона [58]. Этот параметр превышает значение грюновского пробега [58]

$$R_{\text{G}} = 40E^{1.75}/\rho \qquad (21)$$

и реального [58]

$$R = 100E^{1.43}/\rho. \qquad (22)$$

В формулах (21) и (22) энергия электрона $E$ измерена в кэВ, плотность вещества $\rho$ – в г/см$^3$, а $R_{\text{G}}$ и $R$ получаются в нм.

Кроме этих величин введены определение глубины полной диффузии [68]:

$$R_{\text{D}} = 40R_{\text{B}}/[7Z], \qquad (23)$$

на которой направление движения электронов из-за многократного рассеяния становится изотропным, а также величины, определяемые формулами (17)–(19). На рис. 7 приведено распределение электронов с первоначальной энергией 10 кэВ (рис. 7а) и 30 кэВ (рис. 7б) по глубине в кремнии. Вертикальными линиями отмечены различные величины пробега электронов. Видно, что параметры $z_0$, $R_z$ и $R_{\text{D}}$ близки друг к другу. Кроме того, глубина полной диффузии в кремнии достигается в районе максимума распределения электронов. Это означает, что максимум распределения формируется электронами, практически полностью потерявшими свою энергию.

На рис. 8 приведены зависимости пробега электронов в кремнии от начальной энергии электронов. Штриховая линия на рис. 8а указывают границу 1 мкм. Эта граница разделяет шкалу энергий первичных электронов на две части – ниже 7–10 кэВ и выше 10 кэВ. В нижней области энергий рельеф поверхности с высотой менее 1 мкм очень сильно влияет на движение электронов в твердом теле. В области энергий падающего электрона более 10 кэВ влияние такого рельефа на движение электронов внутри твердого тела, но не в приповерхностной зоне, мало. Штриховая линия на рис. 8б обозначает границу 4.7 нм. Это толщина слоя кремния, из которого выходят медленные ВЭ (более подробно об этом будет сказано ниже).

Обратное рассеяние электронов играет важную роль в прикладном применении ВЭЭ, особенно в электронной литографии и растровой электронной микроскопии. Однако рассмотрение этого вопроса представляет собой довольно

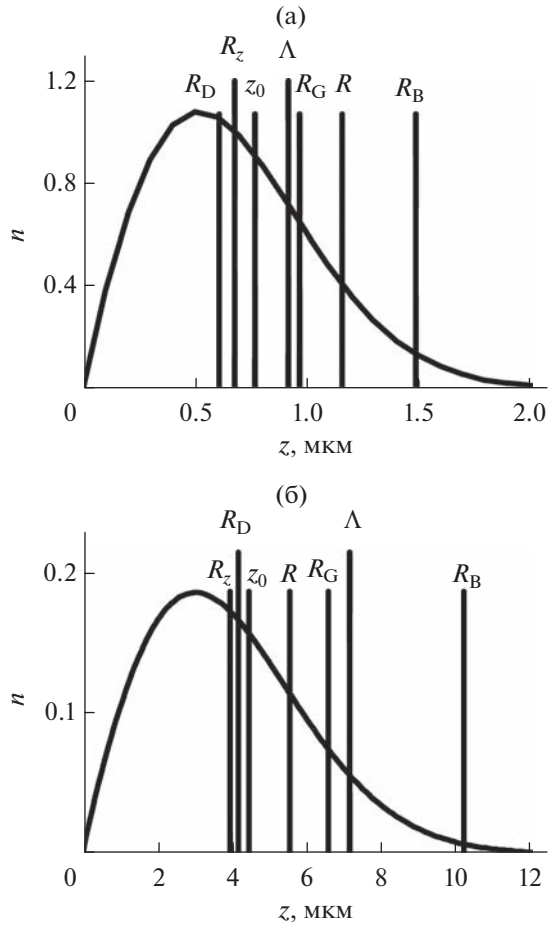


**Рис. 7.** Распределение замедлившихся в кремнии электронов с энергиями 10 кэВ (а) и 30 кэВ (б). Вертикальными линиями показаны величины различных пробегов электронов при этих энергиях.

сложную задачу, что связано с требованием одновременного учета однократного, кратного и многократного упругих рассеяний электронов вместе с процессами, ответственными за потери энергии электронами. Кроме того, необходимо учитывать еще и диффузию электронов в твердом теле. Однако все существующие в настоящее время теоретические модели дают разумные результаты только в ограниченных областях изменения своих параметров. Причем эти области не пересекаются, что требует введения дополнительных неясных с физической точки зрения параметров, “сшивающих” результаты разных моделей.

Наиболее просто решить задачу обратного рассеяния электронов можно с помощью моделирования по методу Монте-Карло [60, 67]. Этот метод [69], по существу, представляет собой численный эксперимент, отличающийся от реального эксперимента только тем, что в него заложен модельный, а не реально существующий механизм взаимодействия электрона с веществом.

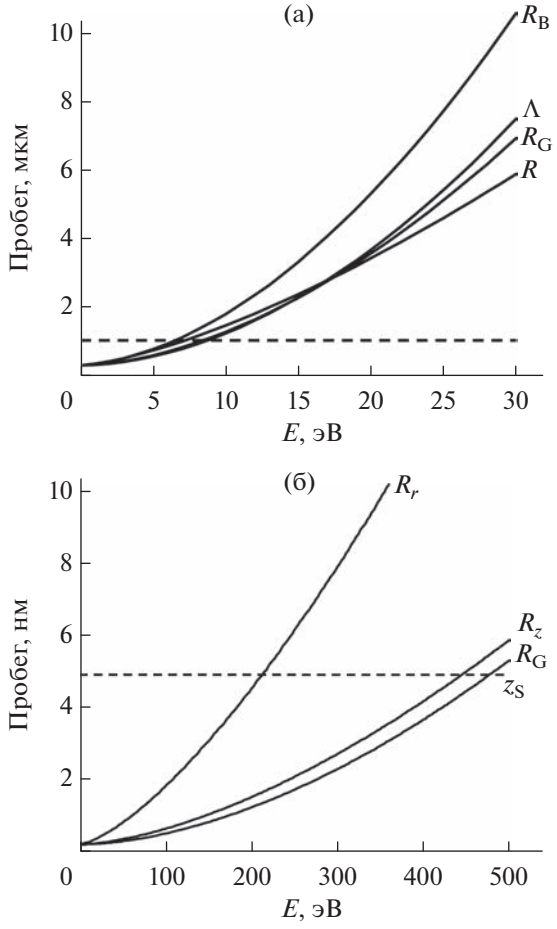


**Рис. 8.** Зависимости пробега электронов в кремнии от начальной энергии электронов. Штриховыми линиями показаны значения 1 мкм (а) и 4.7 нм (б).

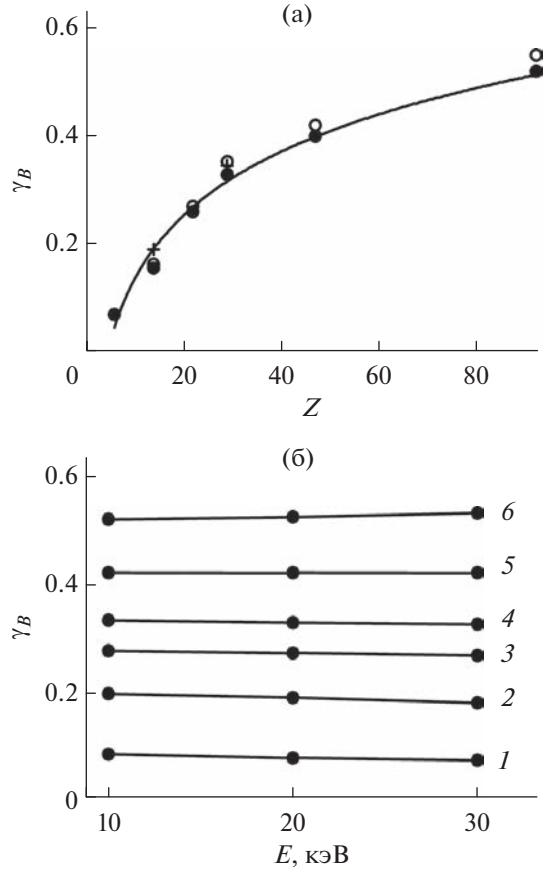


**Рис. 9.** Зависимости коэффициента обратного рассеяния от атомного номера (а) и энергии налетающего электрона при $Z = 6$ (*1*); 14 (*2*); 22 (*3*); 29 (*4*); 47 (*5*); 92 (*6*) (б).

В случае, если обнаружится расхождение расчетов и эксперимента, то в методе Монте-Карло очень просто ввести модификацию взаимодействия, не меняя саму схему расчета. Поэтому метод Монте-Карло получил достаточно широкое применение при решении задач электронной литографии [60, 67] и растровой электронной микроскопии.

Одним из важных параметров обратного рассеяния является коэффициент отражения (обратного рассеяния) электронов $\gamma_B$. В работе [70] он был рассчитан с помощью моделирования по методу Монте-Карло. На рис. 9 приведены зависимости этого коэффициента от атомного номера (рис. 9а) и энергии налетающего электрона (рис. 9б). В диапазоне энергий 10–30 кэВ $\gamma_B$ не зависит от энергии электрона и определяется только видом рассеивающего вещества, достигая значений 0.1–0.5 (рис. 9а) для разных веществ. Вклад обратно рассеянных электронов в спектр вторичных (рис. 2) осуществляется в основном в область спектра *2*.

Кроме эффекта ионизации атома, связанного с неупругими потерями энергии электроном, существуют реакции более сложной эмиссии электрона из атома. К ним относятся эффект Оже [61] и так называемая $(e,2e)$-реакция [71] – прямое выбивание атомарного электрона налетающим электроном. В результате обеих этих реакций атом испускает электроны с фиксированной энергией, определяемой не только строением конкретного атома, но и строением конкретной молекулы, в которую этот атом входит. Вклад таких электронов идет в область спектра *2* (рис. 2).

**Потери энергии электроном за счет тормозного излучения.** Изменение направления движения или уменьшение скорости заряженной частицы сопровождается испусканием электромагнитного излучения, названного тормозным. Теория этого процесса в первом борновском приближении была создана Гайтлером [72]. При энергиях электронов меньше 100 кэВ тормозное излучение называется рентгеновским. В настоящее время теория процесса тормозного излучения разработана достаточно хорошо [72, 73], что позволяет

проводить расчеты эффектов, связанных с тормозным излучением, с любой точностью.

Роль ВЭ в эффекте тормозного излучения играет первичный электрон, испустивший тормозной фотон. Такие электроны дают вклад в область *2* спектра ВЭ (рис. 2).

**Потери энергии электроном за счет образования характеристического излучения атомов.** Кроме тормозного (с непрерывным спектром) излучения в рентгеновском диапазоне при взаимодействии электрона с веществом образуется характеристическое (с дискретным спектром) рентгеновское излучение. Этот эффект используют в растровой электронной микроскопии для локального анализа состава вещества [1–5]. Роль ВЭ в эффекте испускания характеристического излучения играют первичный электрон, потерявший часть энергии, и электрон, испущенный атомом, который получил эту энергию. Вторичные электроны, образованные с помощью такого механизма, дают вклад в область *2* спектра ВЭ (рис. 2).

## ВТОРИЧНЫЕ ЭЛЕКТРОНЫ В РАСТРОВОЙ ЭЛЕКТРОННОЙ МИКРОСКОПИИ

Исследование конкретных механизмов генерации ВЭ обычно производят с помощью конкретных методов и приборов, отличных друг от друга. Однако есть и общие методы, которые не различают отдельные механизмы. К таким методам относится регистрация ВЭ в растровом электроном микроскопе. Дело в том, что детекторы РЭМ не измеряют энергию регистрируемых электронов, которая определяет конкретный механизм генерации вторичных электронов. Но конструкции детекторов [2, 5] позволяют определять в какую область спектра вторичных электронов входят регистрируемые конкретным детектором электроны.

Были разработаны приставки к растровым электронным микроскопам [74], которые измеряют спектры вторичных электронов. Однако широкого распространения такие приставки не получили.

### *Обратно рассеянные и вторичные медленные электроны*

Обратно рассеянными электронами называют все электроны, дающие вклад в области *1* и *2* спектра ВЭ [1, 20] (рис. 2), независимо от их природы, в то время как медленные ВЭ дают вклад только в третью область [1, 20]. Такое разделение имеет и другие обоснования. Например, обратно рассеянные и вторичные медленные электроны вылетают в вакуум с разных глубин. Так обратно рассеянные электроны могут вылетать с глубины до нескольких мкм (рис. 6). В то время как вторичные медленные электроны не могут проходить большие расстояния в веществе. Обычно глубину выхода вторичных медленных электронов принимают равной 1–10 нм [21]. В работе [21] приведено выражение для вычисления этой глубины:

$$z_S = 1.9AZ^{-0.6}/\rho, \qquad (24)$$

где $A$ – атомный вес, $Z$ – атомный номер, $\rho$ – плотность вещества в г/см$^3$, испускающего электроны, а $z_S$ измеряется в нм. Для кремния формула (24) дает $z_S(\mathrm{Si}) = 4.7$ нм.

На рис. 8б эта граница нанесена на графике зависимости от энергии пробега электронов в кремнии. Хорошо видно, что при энергиях ниже 200–400 эВ пробег всех электронов лежит в пределах глубины выхода вторичных медленных электронов. Поэтому контраст изображения, получаемый за счет ионизации атомов вещества исследуемого образца, при этих энергиях первичных электронов должен отсутствовать, так как вся энергия, потерянная первичными электронами, которая определяет количество вторичных медленных электронов, остается в пределах этого слоя. Однако эксперименты в РЭМ с первичными электронами, имеющими энергию 200 эВ, показали, что контраст присутствует [75].

На рис. 10 приведено изображение в РЭМ выступа в кремнии с трапециевидным профилем и большими углами наклона боковых стенок (относительно нормали к поверхности образца), полученное при энергии электронов зонда 200 эВ. Хорошо видно, что контраст изображения рельефа присутствует. Это обусловлено тем, что кроме ионизационных электронов вклад в контраст осуществляют и электроны, полученные за счет “стряхивания” электронов из поверхностных электронных состояний [20, 62, 63], так как порог этого эффекта составляет ~0.3 эВ.

Одним из основных свойств ВЭЭ является ее зависимость от угла падения первичных электронов на поверхность твердого тела $\varphi$ и от угла вылета ВЭ из вещества $\theta$.

Оба эти типа рассмотрены в научной литературе отдельно для обратно рассеянных электронов и вторичных медленных электронов. Например, в работах [58, 76] приведены зависимости коэффициента отражения электронов $\gamma_B(\varphi)$ для кремния, меди и золота (рис. 11, кривые *1*, *2* и *3* соответственно). Для зависимость коэффициента генерации вторичных медленных электронов $\gamma_L(\varphi)$ можно представить в виде [77]:

$$\gamma_L = \gamma_L(\varphi = 0)/\cos\varphi. \qquad (25)$$

Угловое распределение обратно рассеянных электронов $\gamma_B(\theta)$ можно аппроксимировать синусоидальной зависимостью [57] при нормальном падении первичных электронов. Для вторичных медленных электронов зависимость $\gamma_L(\theta)$ ближе

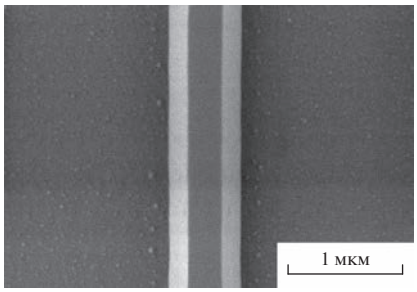


**Рис. 10.** Изображение в РЭМ при энергии электронов зонда 200 эВ выступа с трапециевидным профилем и большими углами наклона боковых стенок.

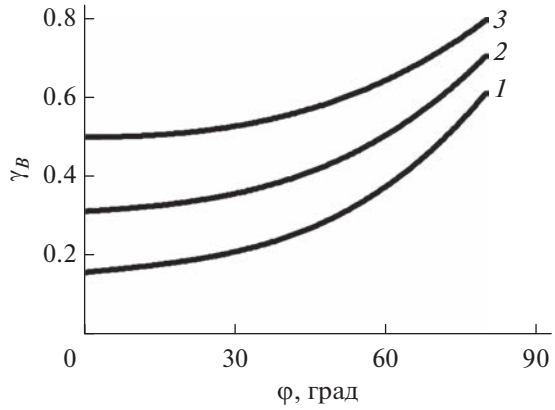


**Рис. 11.** Зависимости коэффициента обратного рассеяния от угла падения φ первичных электронов для кремния (*1*), меди (*2*) и золота (*3*).

всего к косинусоидальной [77, 78]. Экспериментальные исследования угловых зависимостей были выполнены в работах [79, 80].

Деление ВЭ на обратно рассеянные и медленные, кроме всего прочего, позволяет легко экспериментально разделить их вклады в ВЭЭ. Так вторичные медленные электроны можно отсечь введением вещества-поглотителя, которое полностью устраняет эти электроны, или с помощью задерживающего потенциала величиной до 50 В. Вторичные медленные электроны можно сфокусировать на детекторе путем подачи на детектор или образец потенциала величиной до нескольких сотен В. Следует отметить, что этот потенциал практически не искажает движение обратно рассеянных электронов, что не меняет вероятность их регистрации. То есть удается разделить вклады в регистрируемый сигнал от обратно рассеянных и вторичных медленных электронов.

### *Измерение спектра вторичных электронов*

Схематичный спектр обратно рассеянных ВЭ приведена на рис. 2. Существует ряд работ, в которых был измерен реальный спектр ВЭ. Так в работе [74] была описана установка (приставка для РЭМ) для измерения спектра ВЭ. Однако такие приставки серийно не выпускают. Поэтому их применение имеет достаточно малую область использования в растровой электронной микроскопии.

## ЭФФЕКТ МЁЛЛЕРА

При взаимодействии первичных электронов с веществом обычно учитывают упругое рассеяние и неупругие потери энергии. Упругое рассеяние описывается как рассеяние электрона на атомном ядре (выражения (2)–(6)). А неупругие потери энергии – как ионизацию атомов вещества (выражение (14)). Однако, есть один механизм, который объединяет оба процесса – упругое рассеяние и потери энергии первичным электроном. Это эффект Мёллера (C. Møller) [81]. Он заключается в упругом рассеянии электрона на свободном электроне.

Дело в том, что во многих веществах кроме атомарных электронов есть электроны, которые считают свободными (обобществленными). К таким веществам относятся металлы и электронные полупроводники. Если в электронных полупроводниках свободных электронов очень мало (на 5–7 порядков меньше количества атомов в веществе: $10^{15}$–$10^{17}$ электронов в кубическом сантиметре против $10^{22}$ атомов, в которых от 3 до 90 атомарных электронов), то в металлах свободных электронов очень много. На каждый атом приходится от 1 до 4 свободных электронов (зависит от вида металла). Кроме того, после каждого рассеяния Мёллера один движущийся электрон заменяется на два движущихся электрона, которые участвуют в следующих рассеяниях Мёллера. Это приводит к геометрическому возрастанию количества ВЭ, которые дают вклад в области *2* и *3* спектра ВЭ (рис. 2). Поэтому эффект Мёллера необходимо учитывать при формировании изображения в растровой электронной микроскопии.

В нерелятивистском пределе, который реализуется в РЭМ, в первом борновском приближении дифференциальное сечение меллеровского рассеяния имеет вид:

$$d\sigma_{\text{M}}/d\Omega = e^4/[16\pi m_e v^2]^2(1/\sin^4(\vartheta/2) + 1/\cos^4(\vartheta/2) - 1/[\sin^2(\vartheta/2)\cos^2(\vartheta/2)]), \quad (26)$$

где $m_e$ – масса электрона, $v$ – скорость налетающего электрона в системе центра масс, а $\vartheta$ – угол рассеяния электрона в системе центра масс.

Необходимо отметить, что сечение Резерфорда (формула (2)), которая является аналогом формулы Мёллера (выражение (26)), но без учета обменного взаимодействия, приведена для лабораторной системы координат, а сечение Мёллера

(формула (26)) написано для системы центра масс. Поэтому углы рассеяния первичных электронов в формулах (2) и (26) разные – в разных системах координат.

## ИСПОЛЬЗОВАНИЕ ЗАКОНОМЕРНОСТЕЙ ВТОРИЧНОЙ ЭЛЕКТРОННОЙ ЭМИССИИ

Представленные выше закономерности можно использовать для решения ряда проблем применения вторичной электронной эмиссии. Рассмотрим некоторые результаты такого применения.

### *Коэффициент вторичной электронной эмиссии*

Зависимость коэффициента вторичной электронной эмиссии от энергии первичных электронов используют достаточно широко. Это фотоэлектронные умножители [82], микроканальные пластины [76] и электронные лампы [82, 83].

### *Упругое рассеяние и энергетические потери*

Упругое рассеяние и потери энергии первичным электроном используют в основном для моделирования взаимодействия электронов с твердым телом методом Монте-Карло [1, 60, 84].

### *Пробеги электронов*

Пробег электронов в твердом теле может быть использован для оценки эффектов ослабления электронных пучков при их прохождении через твердое тело и оценки влияния параметров рельефа (шаг, высота) на такое ослабление.

### *Эффект Мёллера*

Эффект Мёллера в основном используют как простой пример применения квантовой электродинамики. В РЭМ эффект Меллера никогда не учитывали. Это связано с тем, что с точки зрения математики полное сечение резерфордовского рассеяния с учетом эффекта экранирования является конечным (формула (5)), а мёллеровского рассеяния – бесконечным. С точки зрения физики неучет эффекта Мёллера в растровой электронной микроскопии объясняется двумя причинами.

Во-первых, масса электрона в веществе (эффективная масса) не совпадает с массой покоя свободного электрона [85], которую используют при выводе формулы (26). Во-вторых, энергия свободного электрона в веществе не равна нулю в лабораторной системе координат, как это требуется для эффекта Мёллера. Энергия свободного электрона в металлах отрицательная [82] (работа выхода электрона положительная). Кроме того, за счет того, что электроны – это фермионы, то энергия электрона в лабораторной системе координат для каждого “свободного” электрона своя. Однако, в научной литературе учет таких поправок к эффекту Мёллера отсутствует. Это не позволяет использовать эффект Мёллера в растровой электронной микроскопии.

## ВЫВОДЫ

Подводя итоги, можно сказать, что ВЭЭ изучена достаточно хорошо. Практически все ее закономерности проверены в экспериментах и получили свое физическое объяснение. Для большей их части созданы модели, позволяющие проводить расчеты с достаточно высокой точностью. Все это дает возможность использовать ВЭЭ в различных прикладных исследованиях, например, в растровой электронной микроскопии для изучения состава [1–5] или дефектности вещества [86–88], поверхностного потенциала [89–91], некоторых свойств рельефных поверхностей [1–5] и создания электронных устройств [82, 83]. Однако практически все исследования ВЭЭ проводили на “безрельефных” поверхностях. В то же время применение ВЭЭ в растровой электронной микроскопии, используемой в микро- и наноэлектронике и нанотехнологиях, требует знания закономерностей, которые проявляются именно на рельефных поверхностях. Поэтому требуется изучение влияния рельефа поверхности твердого тела на ВЭЭ.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Reimer L.* Scanning Electron Microscopy: Physics of Image Formation and Microanalysis. Springer Berlin, Heidelberg, 1998. https://doi.org/10.1007/978-3-540-38967-5
2. Практическая растровая электронная микроскопия / Ред. Гоулдстейн Дж., Яковиц Х. Пер. с англ. М.: Мир, 1978. 656 с.
3. *Гоулдстейн Дж., Ньюбери Д., Эчлин П., Джой Д., Фиори Ч., Лифшин Э.* Растровая электронная микроскопия и рентгеновский микроанализ / Пер. с англ. М.: Мир, 1984. 303 с.
4. Микроанализ и растровая электронная микроскопия / Ред. Морис Ф. и др. Пер. с фр. М.: Металлургия, 1985. 392 с.
5. *Криштал М.М., Ясников И.С., Полунин В.И., Филатов А.М., Ульяненков А.Г.* Сканирующая электронная микроскопия и рентгеноспектральный микроанализ в примерах практического применения. М.: Техносфера, 2009. 208 с.
6. Растровая электронная микроскопия для нанотехнологий. Методы и применение. / Ред. Жу У., Уанг Ж.Л. Пер. с англ. М.: БИНОМ. Лаборатория знаний, 2013. 582 с.
7. International Technology Roadmap for Semiconductors. 2013 Edition. Metrology. 2013. 42 p.

8. *Hatsuzawa T., Toyoda K., Tanimura Y.* // Rev. Sci. Instrum. 1990. V. 61. № 3. P. 975.
9. *Marchman H.M., Griffith J.E., Guo J.Z.Y., Frackoviak J., Celler G.K.* // J. Vacuum Sci. Technol. 1994. V. B12. № 6. P. 3585.
10. *Новиков Ю.А., Раков А.В.* // Измерительная техника. 1999. № 1. С. 14.
11. *Postek M.T., Vladar A.E.* Critical dimension metrology and the scanning electron microscope / Handbook of Silicon Semiconductor Metrology. Ed. *Diebold A.C.* Marcel Dekker Inc. New York – Basel, 2001. P. 295.
12. *Postek M.T.* // Proc. SPIE. 2002. V. 4608. P. 84.
13. *Постек М.* // Вестник технического регулирования. 2007. № 7. С. 8.
14. *Гавриленко В., Новиков Ю., Раков А., Тодуа П.* // Наноиндустрия. 2009. № 4. С. 36.
15. *Gavrilenko V.P., Novikov Yu.A., Rakov A.V., Todua P.A.* // Proc. SPIE. 2009. V. 7405. P. 740504. https://doi.org/10.1117/12.826164
16. *Тодуа П.А., Быков В.А., Волк Ч.П., Горнев Е.С., Желкобаев Ж., Зыкин Л.М., Ишанов А.Б., Календин В.В., Новиков Ю.А., Озерин Ю.В., Плотников Ю.И., Прохоров А.М., Раков А.В., Саунин С.А., Черняков В.Н.* // Микросистемная техника. 2004. № 3. С. 25.
17. *Gavrilenko V.P., Kalnov V.A., Novikov Yu.A., Orlikovsky A.A., Rakov A.V., Todua P.A., Valiev K.A., Zhikharev E.N.* // Proc. SPIE. 2009. V. 7272. P. 727227. https://doi.org/10.1117/12.814062
18. *Gavrilenko V.P., Novikov Yu.A., Rakov A.V., Todua P.A., Volk Ch.P.* // Proc. SPIE. 2009. V. 7272. P. 72720Z. https://doi.org/10.1117/12.813514
19. *Новиков Ю.А.* // Микроэлектроника. 2017. Т. 46. № 1. С. 61. https://doi.org/10.7868/S0544126917010070
20. *Новиков Ю.А., Раков А.В.* // Труды ИОФАН. 1998. Т. 55. С. 3.
21. *Бронштейн И.М., Фрайман Б.С.* Вторичная электронная эмиссия. М.: Наука, 1969. 407 с.
22. *Шульман А.З., Фридрихов С.А.* Вторично-эмиссионные методы исследования твердого тела. М.: Наука, 1977. 551 с.
23. *Модинос А.* Авто-, термо и вторично-электронная эмиссионная спектроскопия. М.: Наука, 1990. 320 с.
24. *Герус В.Л.* Физические основы электронно-лучевых приборов. М.: Наука, 1993. 352 с.
25. *Корнюшкин Ю.Д.* // Поверхность. Рентген., синхротр. и нейтрон. исслед. 1992. № 9. С. 27.
26. *Каничева И.Р., Павлова А.А.* // Физика твердого тела. 1966. Т. 8. № 5. С. 1641.
27. *Лорикян М.П., Ковалов З.Д., Трофимчук Н.Н.* // Радиотехника и электроника. 1969. Т. 14. № 5. С. 935.
28. *Бушкевич В.Г., Бутслов М.М.* // Радиотехника и электроника. 1958. Т. 3. № 3. С. 355.
29. *Каничева И.Р., Бурцев В.А.* // Физика твердого тела. 1959. Т. 1. № 8. С. 1250.
30. *Вятский А.Я., Трунев В.В.* // Радиотехника и электроника. 1967. Т. 12. № 9. С. 1636.
31. *Гомоюнова М.В., Алиев Б.З.* // Физика твердого тела. 1969. Т. 11. № 12. С. 3619.
32. *Шульман А.Р., Кораблев В.В., Морозов Ю.А.* // Физика твердого тела. 1970. Т. 12. № 2. С. 666.
33. *Шульман А.Р., Кораблев В.В., Морозов Ю.А.* // Физика твердого тела. 1970. Т. 12. № 3. С. 758.
34. *Морозов Ю.А., Осарков Е.Б.* // Физика твердого тела. 1971. Т. 13. № 7. С. 2051.
35. *Бронштейн И.М., Бродниченко А.Н.* // Радиотехника и электроника. 1969. Т. 14. № 2. С. 1528.
36. *Афонина А.Ф., Воробьева О.Б., Климин А.И., Стучинский Г.Б.* // Радиотехника и электроника. 1969. Т. 14. № 12. С. 2237.
37. *Бронштейн И.М., Проценко А.И.* // Радиотехника и электроника. 1970. Т. 15. № 9. С. 805.
38. *Бронштейн И.М., Бродниченко А.Н.* // Радиотехника и электроника. 1970. Т. 15. № 8. С. 1721.
39. *Рашковский С.Ф.* // Радиотехника и электроника. 1958. Т. 3. № 3. С. 371.
40. *Бронштейн И.М., Сегаль Р.Б.* // Физика твердого тела. 1959. Т. 1. № 8. С. 1247.
41. *Рогаля Л.М.* // Радиотехника и электроника. 1967. Т. 12. № 9. С. 1680.
42. *Бронштейн И.М., Сегаль Р.Б.* // Радиотехника и электроника. 1960. Т. 5. № 10. С. 1741.
43. *Лепешинская В.Н., Борисов В.Л., Перчанак Т.М.* // Радиотехника и электроника. 1960. Т. 5. № 10. С. 1636.
44. *Шульман А.Р., Закирова И.Р., Морозов Ю.А., Фридрихов С.А.* // Радиотехника и электроника. 1958. Т. 3. № 3. С. 329.
45. *Фридрихов С.А., Шульман А.Р.* // Физика твердого тела. 1959. Т. 1. № 8. С. 1259.
46. *Фридрихов С.А., Шульман А.Р.* // Физика твердого тела. 1959. Т. 1. № 8. С. 1268.
47. *Зорин И.Е., Коган В.М., Абрамова Н.Н.* // Радиотехника и электроника. 1981. Т. 26. № 4. С. 889.
48. *Harrower G.A.* // Physical Review. 1956. V. 104. № 1. P. 52.
49. *Бронштейн И.М., Рощин В.В.* // Журн. технической физики. 1958. Т. 28. № 10. С. 2200.
50. *Бронштейн И.М., Рощин В.В.* // Журн. технической физики. 1958. Т. 28. № 11. С. 2476.
51. *Шульман А.Р., Ганичев Д.А.* // Физика твердого тела. 1962. Т. 4. № 3. С. 745.
52. *Шульман А.Р., Ганичев Д.А.* // Физика твердого тела. 1960. Т. 2. № 3. С. 530.
53. *Крылова И.В.* // Поверхность. Рентген., синхротр. и нейтрон. исслед. 1988. № 1. С. 5.
54. *Фридрихов С.А.* // Физика твердого тела. 1960. Т. 2. № 1. С. 171.
55. *Фридрихов С.А., Горячева С.Н.* // Известия АН СССР. Сер. физ. 1958. Т. 22. № 5. С. 486.
56. *Вавилов В.С., Киселев В.Ф., Мукашев Б.Н.* Дефекты в кремнии и на его поверхности. М.: Наука, 1990. 216 с.
57. *Ковалев В.П.* Вторичные электроны. М.: Энергоиздат, 1987. 177 с.
58. *Броудай И., Мерей Дж.* Физические основы микротехнологии. Пер. с англ. М.: Мир, 1985. 496 с.
59. Бета- и гамма-спектроскопия / Ред. Зигбан К. Пер. с англ. М.: Государственное издательство физико-математической литературы, 1959.
60. *Валиев К.А.* Физика субмикронной литографии. М.: Наука, 1990. 528 с.

61. Методы анализа поверхностей. / Ред. Зандерна А. Пер. с англ. М.: Мир, 1979. 582 с.
62. *Новиков Ю.А., Прохоров А.М., Раков А.В.* // Поверхность. Физика, химия, механика. 1993. № 3. С. 22.
63. *Новиков Ю.А., Раков А.В.* // Поверхность. Рентген., синхротр. и нейтрон. исслед. 1999. № 8. С. 24.
64. *Nosker R.W.* // J. Appl. Phys. 1969. V. 40. P. 1872.
65. *Bethe H.A., Rose M.E., Smith H.I.* // Proc. Am. Philosophical Soc. 1938. V. 78. P. 573.
66. *Махов А.Ф.* // Физика твердого тела. 1960. Т. 2. № 9. С. 2172.
67. *Валиев К.А., Кириллов А.Н., Ковтун Б.Н., Махвиладзе Т.М., Мкртчян М.М.* // Труды ИОФАН. 1987. Т. 8. С. 5.
68. *Reimer L.* // Scanning Electron Microscopy. 1979. № 2. P. 111.
69. *Ермаков С.М., Михайлов Г.А.* Курс статистического моделирования. М.: Наука, 1976. 319 с.
70. *Newbury D.E., Yakowitz H.* // Proc. Workshop Held at the NBS. Gaithersburg: NBS. 1976. P. 15.
71. *Хейфец А.С.* // Журнал экспериментальной и теоретической физики. 1985. Т. 89. № 2. Вып. 8. С. 459.
72. *Гайтлер В.* Квантовая теория излучения. Пер. с англ. М.: Иностранная литература, 1956.
73. *Шпольский Э.В.* Атомная физика. Т. 1. М.: Наука, 1974. 575 с.
74. *Аристов В.В., Дремова Н.Н., Рау Э.И.* // Журн. технической физики. 1996. Т. 66. № 10. С. 78.
75. *Новиков Ю.А.* // Микроэлектроника. 2014. Т. 43. № 5. С. 373. https://doi.org/10.7868/S0544126914050068
76. *Postek M.T., Keery W.J., Frederick N.V.* // Rev. Sci. Instrum. 1990. V. 61. № 6. P. 1648.
77. *Kanter H.* // Annals of Physics. 1957. V. 20. P. 144.
78. *Hachenberg O., Brauer W.* // Adv. Electronics Electron Phys. 1959. V. 11. P. 413.
79. *Борисов В.Л., Перчанок Т.М., Лепешинская В.Н.* // Радиотехника и электроника. 1960. Т. 5. № 10. С. 1643.
80. *Сотников В.М.* // Поверхность. Рентген., синхротр. и нейтрон. исслед. 1988. № 1. С. 59.
81. *Берестецкий В.Б., Лифшиц Е.М., Питаевский Л.П.* Квантовая электродинамика. 4-е изд. М.: Физматлит, 2002. 720 с.
82. *Жигарев А.А., Шамаева Г.Т.* Электронно-лучевые и фотоэлектронные приборы. М.: Высшая школа, 1982. 463 с.
83. *Батушев В.А.* Электронные приборы. М.: Высшая школа, 1969. 608 с.
84. *Новиков Ю.А.* // Поверхность. Физика, химия, механика. 1995. № 10. С. 58.
85. *Епифанов Г.И.* Физические основы микроэлектроники. М.: Советское радио, 1971. 376 с.
86. *Van der Ziel A.* // Phys. Rev. 1953. V. 92. № 1. P. 35.
87. *Томашпольский Ю.Я., Севостьянов М.А., Садовская Н.В., Колганова Н.В.* // Журн. технической физики. 1990. Т. 60. № 6. С. 103.
88. *Коханчик Л.С.* // Заводская лаборатория. 1994. № 7. С. 21.
89. *Спивак Г.В., Рау Э.И., Карелин Н.М., Назаров М.В.* // Микроэлектроника. 1978. Т. 7. № 3. С. 212.
90. *Дюков В.Г.* // Поверхность. Рентген., синхротр. и нейтрон. исслед. 1982. № 11. С. 1.
91. *Дюков В.Г., Непийко С.А., Седов Н.Н.* Электронная микроскопия локальных потенциалов. Киев: Наукова думка, 1991. 200 с.

## Modern Scanning Electron Microscopy. 1. Secondary Electron Emission

**Yu. A. Novikov***

[1]*Prokhorov General Physics Institute of the Russian Academy of Sciences, 38, Vavilov Street, Moscow, 119991 Russia*

**e-mail: nya@kapella.gpi.ru*

The development of modern technologies, including nanotechnology, is based on application of diagnostic methods of objects used in technologies processes. For this purpose most perspective are methods realized in a scanning electron microscope. Thus one of basic methods is the measurement of linear sizes of relief structures of micrometer and nanometer ranges used in micro- and nanoelectronic. In a basis of a scanning electron microscope job the secondary electronic issue of firm body lays. However, practically all researches were spent on surfaces, which relief was neglected. The review of theoretical and experimental materials to researches of a secondary electron emission is given. Practically all known laws are checked up in experiments and have received the physical explanation. However, the application of a secondary electronic emission in a scanning electron microscopy, used in micro- both nanoelectronic and nanotechnology, requires knowledge of laws, which are shown on relief surfaces. Is demonstrated, what laws can be applied in a scanning electron microscope to measurement of linear sizes of relief structures. Is judged necessity of an influence study of a surface relief on a secondary electron emission.

**Keywords:** scanning electron microscopy, secondary electron emission, mechanisms of emission, ionization mechanism, shake off effect, secondary slow electrons, backscattered electrons, Monte Carlo method.

УДК 62-933.2:62-932.4:533.9

# УСТОЙЧИВОСТЬ ДВУХПЛЕЧЕВОГО РАЗРЯДА В КОЛЬЦЕВОМ ЛАЗЕРЕ

© 2023 г. М. В. Чиркин[a], С. В. Устинов[a], *, В. Ю. Мишин[a], А. Е. Серебряков[a]

[a] Рязанский государственный радиотехнический университет им. В.Ф. Уткина, Рязань, 390005 Россия

*e-mail: ustinow62@yandex.ru

Поступила в редакцию 26.06.2022 г.
После доработки 17.08.2022 г.
Принята к публикации 17.08.2022 г.

Разработан метод определения порога для развития неустойчивости газового разряда в кольцевом гелий-неоновом лазере, учитывающий распределенную емкость "положительный столб–заземленный экран". В разработанном подходе к анализу устойчивости, положительный столб разряда заменен эквивалентной схемой, содержащей последовательное соединение отрицательного динамического сопротивления ρ и параллельных *RL*-цепочек. Синтезировать эквивалентную схему позволяют экспериментальные исследования линейной реакции газоразрядной плазмы на слабые гармонические возмущения, представленные в форме частотных зависимостей комплексного сопротивления *Z* положительного столба. Расчет порога развития неустойчивости в электрической цепи двухплечевого разряда лишь на основе экспериментально зарегистрированной частотной зависимости комплексного сопротивления положительного столба не позволяет распространить количественный анализ на условия за пределами диапазона условий, в котором выполнены измерения. Чтобы преодолеть данное ограничение, препятствующее поиску рабочего тока, при котором развитие неустойчивости исключено для всего температурного диапазона эксплуатации кольцевых гелий-неоновых лазеров, разработана модель, описывающая положительный столб газового разряда. Найдена граница неустойчивого состояния двухплечевого газового разряда в пространстве параметров: сопротивление балластных резисторов, температура, монтажная емкость и ток разряда. Полученные результаты позволяют обеспечить поддержание двухплечевого разряда постоянного тока в заданном диапазоне изменения температуры.

**Ключевые слова:** кольцевой лазер, инерционный процесс, ионизационная неустойчивость, положительный столб, двухплечевой разряд постоянного тока.

**DOI:** 10.31857/S1028096023050059, **EDN:** AKLCBH

## ВВЕДЕНИЕ

Регистрация углов поворота (составляющих вектора угловой скорости) с помощью кольцевых гелий-неоновых лазеров, функционирующих в составе бесплатформенной инерциальной навигационной системы, требует продолжительной безотказной работы кольцевых гелий-неоновых лазеров в широком температурном диапазоне. Активная среда кольцевого гелий-неонового лазера возбуждается симметричным двухплечевым разрядом постоянного тока [1], что ограничивает срок службы процессами, вызванными распылением холодного катода под действием ионной бомбардировки [2]. Возможность для снижения рабочего тока и, как следствие, увеличения ресурса лазера до 100000 ч непрерывной работы открывают технологии формирования зеркал кольцевого резонатора со сверхслабыми потерями оптического излучения [3]. Однако разрядный промежуток кольцевых гелий-неоновых лазеров включает два протяженных участка положительного столба, характеризующиеся падающими вольтамперными характеристиками (ВАХ). Отрицательное динамическое сопротивление газоразрядной плазмы, абсолютная величина которого растет по мере уменьшения тока, является предпосылкой развития неустойчивости электрической цепи и самовозбуждения колебаний тока и напряжения [4]. Таким образом, устойчивость разряда в кольцевом гелий-неоновом лазере необходимо гарантировать при минимально возможном токе.

Порог развития неустойчивости в электрической цепи, включающей газоразрядный промежуток, зависит от различных параметров: тока, температуры, состава и давления газовой смеси [4–6]. Температура окружающей среды в условиях эксплуатации бесплатформенной инерциальной навигационной системы изменяется в широком диапазоне [7, 8], что влияет на характеристики газового разряда, в том числе и на падение напряжения между анодами и катодом [9]. Известен подход к анализу устойчивости, в котором положительный столб разряда заменяют эквивалентной схемой, содержащей последовательное

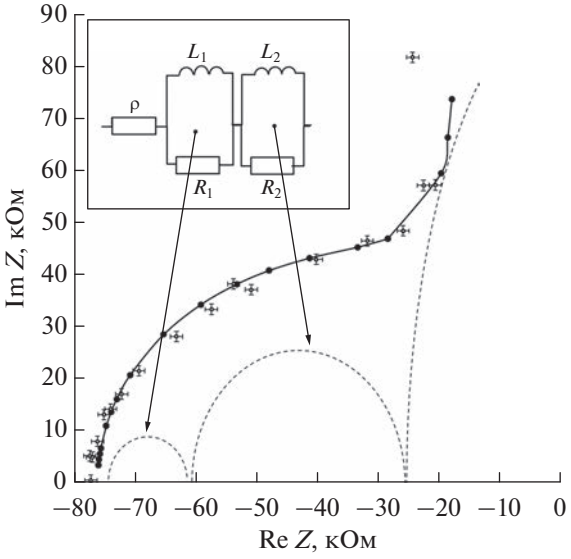


**Рис. 1.** Частотная зависимость комплексного сопротивления разряда положительного столба в одном из плеч кольцевого лазера и ее схема замещения. Белыми точками на графике показаны экспериментальные данные, черным – результаты аппроксимации по формуле (1). На вставке представлена эквивалентная схема с соотношением параметров: $L_1/R_1 = 13$ мкм, $L_2/R_2 = 0.3$ мкм.

соединение отрицательного динамического сопротивления ρ и параллельных *RL*-цепочек [9]. Синтезировать эквивалентную схему позволяют экспериментальные исследования линейной реакции газоразрядной плазмы на слабые гармонические возмущения, представленные в форме частотных зависимостей комплексного сопротивления $Z$ положительного столба, или расчеты комплексного сопротивления с помощью теоретической модели. Однако влияние температуры газа на динамические свойства плазмы в разрядных каналах кольцевых гелий-неоновых лазеров до настоящего времени не исследовано, что препятствует анализу устойчивости электрической цепи двухплечевого разряда при поиске приемлемой величины рабочего тока.

Целью настоящей работы являлось увеличение эксплуатационной надежности лазерного гироскопа на основе подавления неустойчивости стационарного состояния двухплечевого газового разряда в кольцевом лазере в широком диапазоне температур.

## ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ РЕГИСТРАЦИЯ КОМПЛЕКСНОГО СОПРОТИВЛЕНИЯ И ЭКВИВАЛЕНТНАЯ СХЕМА ПОЛОЖИТЕЛЬНОГО СТОЛБА

Экспериментальные исследования выполнены с помощью установки, использованной в [9] для измерения линейной реакции газового разряда на слабое гармоническое возмущение. Установка позволяет выполнять измерения комплексных сопротивлений положительного столба $Z(i\omega)$ в температурном диапазоне от −30 до +85°C; $i = \sqrt{-1}$, ω – циклическая частота возмущения. Прибор изготовлен на основе ситаллового моноблока и наполнен смесью гелия и неона в соотношении 16 : 1 до давления 750 Па. Разрядные промежутки ограничены медными анодами и холодным катодом из алюминия. Длина каждого плеча разряда $l$ составляла 6.3 см, диаметр разрядных каналов – 2.7 мм.

Комплексное сопротивление $Z$ положительного столба разряда при частотах возмущения, превышающих 2 кГц, имитирует эквивалентная схема, содержащая последовательно соединенные отрицательное динамическое сопротивление и два инерционных элемента – *RL* цепочки [9]:

$$Z(i\omega) = \rho + \frac{i\omega\tau_1}{1+i\omega\tau_1} R_1 + \frac{i\omega\tau_2}{1+i\omega\tau_2} R_2. \qquad (1)$$

Две *RL*-цепочки имитируют инерционные процессы в положительном столбе (рис. 1): первая отражает влияние на ионизационный баланс в плазме процессов с участием метастабильных атомов, вторая – вклад ионизации атомов газа прямым электронным ударом. За времена $\tau_1 \approx 13$ мкс, $\tau_2 \approx 0.3$ мкс устанавливаются концентрации метастабильных атомов и электронов соответственно. Результаты экспериментов и синтез эквивалентных схем при различных температурах моноблока позволили зарегистрировать монотонное уменьшение величины сопротивления $R_1$ с ростом температуры моноблока (рис. 2); другие параметры эквивалентной схемы оказались независимыми от температуры.

Модуль отрицательного динамического сопротивления ρ (при токе в плече 750 мкА $\rho \approx -73$ кОм) превышает величину сопротивления $R_1$, что исключает интерпретацию ионизации с участием метастабильных атомов в качестве единственной причины формирования падающей ВАХ у положительного столба. В рассматриваемых условиях поддержания газового разряда сохранение отрицательной действительной части у комплексного сопротивления плазмы вплоть до частот, обратных времени релаксации концентрации электронов ($\tau_2$), вызвано постепенным переходом поперечной диффузии электронов от амбиполярной к свободной при уменьшении тока [10]. Уменьшение тока сопровождается ростом напряжения поддержания разряда и составляющей динамического сопротивления плазмы, связанной переходным характером диффузии электронов. В результате, при значениях частоты возмущения в несколько сотен кГц стабилизация двухплечевого разряда с помощью балластных резисторов, соединенных с анодами кольцевого гелий-неонового лазера, становится проблематичной из-за их шунтирования монтажными емкостями. Обнаруженный эффект является предпосылкой для раз-

вития неустойчивости разряда в случае внешнего нагрева кольцевого гелий-неонового лазера. Таким образом, задача идентификации причины, из-за которой температура газовой смеси в кольцевом гелий-неоновом лазере влияет на динамические свойства положительного столба, является частью проблемы анализа устойчивости стационарного состояния электрической цепи, включающей симметричный двухплечевой газоразрядный промежуток.

## РАСПРЕДЕЛЕННАЯ МОДЕЛЬ ДЛЯ РАСЧЕТА ПОРОГА РАЗВИТИЯ НЕУСТОЙЧИВОСТИ ЭЛЕКТРИЧЕСКОЙ ЦЕПИ ДВУХПЛЕЧЕВОГО РАЗРЯДА В КОЛЬЦЕВЫХ ГЕЛИЙ-НЕОНОВЫХ ЛАЗЕРАХ

В блоке чувствительных элементов бесплатформенной инерциальной навигационной системы кольцевые лазеры расположены внутри пермаллоевых ванночек. В таких условиях малые возмущения газоразрядной плазмы необходимо рассматривать, как процесс в активной линии передачи “положительный столб–корпус ванночки”, которая включает комплексное сопротивление единицы длины положительного столба $z$ и распределенную емкость $c$ между положительным столбом и корпусом ванночки. С помощью установки и методики, описанных в [10], выполнены измерения диэлектрической проницаемости ситалла в диапазоне температур $T$ от $-10$ до 150°C и диапазоне частот от 70 до 200 кГц, на основании которых выполнена аппроксимация зависимостей распределенной емкости $c$ от частоты возмущения и температуры ситалла.

Фазовое (2) и амплитудное (3) условия возбуждения автоколебаний в линии передачи “положительный столб–корпус ванночки”, нагруженной на балластные резисторы $R_b$, соединенные с анодами, и паразитные монтажные емкости $C_0$ между анодами и корпусом ванночки, имеют вид:

$$2\arg K(i\omega_0) - 2l\sqrt{2\omega_0 c\left(\operatorname{Im} z(i\omega_0) + |z(i\omega_0)|\right)} = 0, \quad (2)$$

$$\left|K(i\omega_0)\right| \exp\left(-2l \operatorname{Re}\gamma(i\omega_0)\right) \geq 1, \quad (3)$$

где $K(i\omega)$ – коэффициент отражения волны от параллельных соединений $R_b$–$C_0$:

$$K(i\omega) = 1 - \frac{2\gamma(1 + i\omega R_b C_0)}{\gamma(1 + i\omega R_b C_0) + i\omega R_b c}, \quad (4)$$

$\gamma(i\omega)$ – комплексная постоянная распространения волны:

$$\gamma(i\omega) = \operatorname{Re} z\sqrt{\frac{2\omega c}{\operatorname{Im} z + |z|}} + i\sqrt{\frac{\omega c\left(\operatorname{Im} z + |z|\right)}{2}}. \quad (5)$$

Анализ устойчивости выполнен с учетом зависимости распределенной емкости от частоты возмущений и температуры моноблока. По результатам расчетов построены зависимости критических значений балластных сопротивлений $R_b$ от температуры $T$, разделяющие область устойчивого и неустойчивого разряда (рис. 3); ниже критической кривой разряд устойчив. По мере увеличения температуры область неустойчивости стационарного состояния разряда расширяется, что соответствует уменьшению вклада ионизации метастабильных атомов в комплексное сопротивление плазмы (рис. 2). Критические кривые на рис. 2 позволяют выбрать величину балластного сопротивления $R_b$, обеспечивающую устойчивость стационарного состояния двухплечевого разряда, однако лишь при величине тока, для которой выполнены измерения частотной зависимости комплексного сопротивления и синтезирована эквивалентная схема. В рассматриваемом случае надежная стабилизация стационарного состояния электрической цепи требует использования балластных резисторов с сопротивлениями не более 400 кОм.

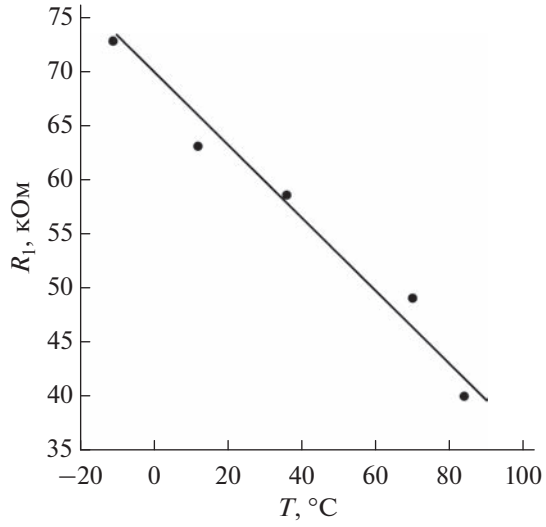


**Рис. 2.** Температурная зависимость сопротивления $R_1$ в синтезированной эквивалентной схеме положительного столба при токе в плече разряда 750 мкА. Точки – результаты измерений, линия – линейная аппроксимация результатов.

## АНАЛИЗ ПРИМЕНЕНИЯ ВАРИАЦИИ АЛЛАНА ДЛЯ ОПРЕДЕЛЕНИЯ УГЛОВОЙ ПОГРЕШНОСТИ ЛАЗЕРНОГО ГИРОСКОПА

В работе [11] был выполнен анализ нестационарных потоков газа в кольцевом гелий-неоновом лазере, приводящих к медленным флуктуациям выходного сигнала лазерного гироскопа. Для описания характеристик точности гироскопов существует стандарт IEEE, основанный на вычислении вариации Аллана [12, 13]. Датчик был размещен на виброизолирующем фундаменте, таким образом, чтобы его ось чувствительности была направлена вертикально вверх. При та-

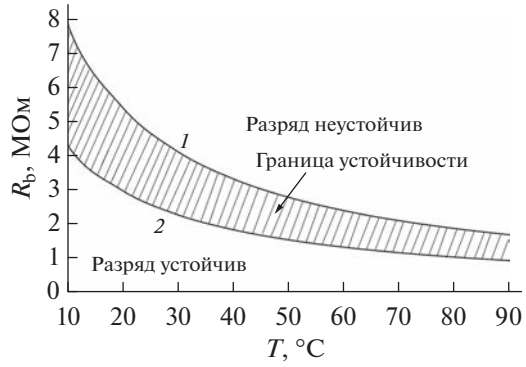


**Рис. 3.** Активная линия передачи “положительный столб разряда в кольцевом гелий-неоновом лазере–корпус” и зависимости критического значения балластного сопротивления от температуры при токе в плече разряда 750 мкА. Монтажная емкость $C_0$ составляла 3 (*1*) и 1.5 (*2*) пФ. В области под критической кривой разряд устойчив, выше границы устойчивости (заштрихованная область) – неустойчив.

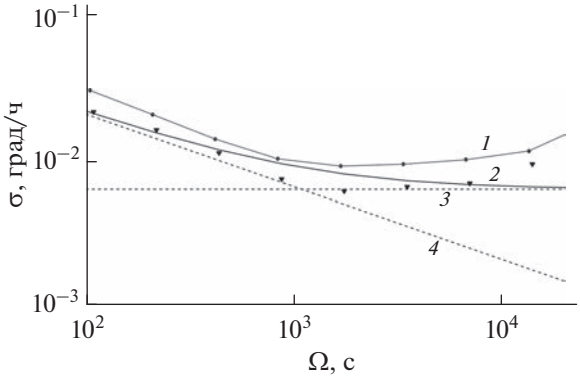


**Рис. 4.** Зависимость вариации Аллана [12] для лазерного гироскопа при токах разряда 650 (*1*) и 560 (*2*) мкА. Пунктирные линии *3* и *4* соответствуют случаям нестабильного дрейфа и случайного углового ухода соответственно.

ком расположении датчика, его выходной сигнал будет содержать следующие составляющие: проекцию угловой скорости вращения Земли на вертикаль, колебания на частоте вибрационной частотной подставки и случайную составляющую ошибки.

Изменение измеренного значения вертикальной составляющей угловой скорости вращения Земли в течение длительного времени (десятки ч) имеет немонотонный характер [11]. Сначала напряжение горения разряда растет, потом резко падает, снова растет из-за выброса посторонних примесей из стенок разрядных каналов в газовую смесь. Ток разряда при проведении измерений составлял 560–650 мкА. При нестабильности дрейфа выходного сигнала лазерного гироскопа 6000 град/ч выбросов примесей в разряд нет. Уровень нестабильности дрейфа уменьшается в два раза из-за уменьшения тока разряда до 560 мкА. Следовательно, ток разряда необходимо уменьшать, насколько это позволяет сделать существующее качество оптики.

Выявлен предел уменьшения нестабильности дрейфа (рис. 4). Кривые *1* и *2* являются аппроксимациями экспериментальных данных, построенные с помощью формулы [12]:

$$\sigma_1 = A/B, \quad \sigma_2 = B/T^{1/2}, \quad \sigma_3 = C, \qquad \sigma = (\sigma_1^2 + \sigma_2^2 + \sigma_3^2)^{1/2}, \tag{6}$$

где $\sigma_1$ – составляющая случайной ошибки, обусловленная шумом квантования; $\sigma_2$ – угловые случайные уходы вследствие ошумления частотной подставкой; $\sigma_3$ – нестабильность дрейфа выходного сигнала лазерного гироскопа. $A$, $B$ и $C$ – коэффициенты аппроксимирующей функции (6), характеризующие вклад соответствующих составляющих случайной ошибки $\sigma_1$, $\sigma_2$ и $\sigma_3$ в выходной сигнал лазерного гироскопа.

Эксперимент проводили в течение порядка 22 ч, рост напряжения стабилизировался у порога 20000 с, в это же время стабилизировалась и разница температур. На графике (рис. 4) видно, что при 60000 с нестабильность дрейфа крайне мала, что явилось следствием уменьшения тока горения разряда до 560 мкА. Кроме ресурса, выявлена более важная причина с точки зрения эксплуатации кольцевого лазера – это уменьшение нестабильности дрейфа, вызванное различием условий движения возбужденных атомов неона в активной среде. Так как единственный способ уменьшения нестабильности дрейфа – уменьшение тока разряда, следовательно, необходимо по возможности уменьшить ток, что приводит к проблеме обеспечения стабильности горения разряда во всем диапазоне температур.

## МОДЕЛИРОВАНИЕ ЛИНЕЙНОЙ РЕАКЦИИ ПОЛОЖИТЕЛЬНОГО СТОЛБА ГАЗОВОГО РАЗРЯДА В КОЛЬЦЕВЫХ ГЕЛИЙ-НЕОНОВЫХ ЛАЗЕРАХ НА СЛАБОЕ ВОЗМУЩЕНИЕ

Расчет порога развития неустойчивости в электрической цепи двухплечевого разряда лишь на основе экспериментально зарегистрированной частотной зависимости комплексного сопротивления положительного столба не позволяет распространить количественный анализ за пределы диапазона условий, в котором выполнены измерения. Чтобы преодолеть данное ограничение, препятствующее поиску рабочего тока, при котором развитие неустойчивости исключено для всего температурного диапазона эксплуатации кольцевых гелий-неоновых лазеров, необходима модель, описывающая положительный столб газового разряда.

Модель положительного столба газового разряда, содержит уравнения баланса (7)–(10) для концентрации электронов и метастабильных атомов [14]:

$$\frac{dN_e}{dt} = \nu_i N_e + \sum_{j=1}^{3}(K_{m,j}N_{m,j}^2 + \nu_{p,j}N_{m,j}) + \\ + K_{m,1} - 2N_{m1}N_{m2} - \nu_l N_e + \\ + K_{si}(N_{m,1} + N_{m,2} + N_{m3})N_e, \quad (7)$$

$$\frac{dN_{m,1}}{dt} = \nu_1 N_e - 2K_{m1}N_{m1}^2 - \\ - \nu_{p1}N_{m,1} - K_{m,1} - 2N_{m,1}N_{m,2} - \\ - K_{1-3}N_{m,1}N_{\mathrm{Ne}} - \frac{N_{m,1}}{\tau_{d1}} - K_{si}N_{m,1}N_e, \quad (8)$$

$$\frac{dN_{m,2}}{dt} = \nu_2 N_e - 2K_{m2}N_{m2}^2 - \\ - \nu_{p2}N_{m,2} - K_{m,1-2}N_{m,1}N_{m,2} - \\ - K_{2-3}N_{m,2}N_{\mathrm{Ne}} - \frac{N_{m,2}}{\tau_{d1}} - K_{si}N_{m,2}N_e, \quad (9)$$

$$\frac{dN_{m,3}}{dt} = \nu_3 N_e + (\beta_1 K_{1-3}N_{m,1} + \beta_2 K_{1-3}N_{m,2})N_{\mathrm{Ne}} - \\ - 2K_{m,3}N_{m,3}^2 - \nu_{p3}N_{m,3} - \frac{N_{m,3}}{\tau_{d2}} - \\ - K_{\mathrm{slow}}N_e N_{m,3} - K_{si}N_{m,3}N_e. \quad (10)$$

Безразмерные коэффициенты $\beta_{1,2} < 1$ во втором слагаемом в правой части уравнения (10) нужны для учета потерь в результате оптических переходов из состояний $2s_2$ и $3s_2$ в метастабильное состояние $1s_5$. При построении системы уравнений баланса для концентраций электронов и возбужденных атомов учтены следующие процессы [14]:

1. Ионизация атомов гелия и неона прямым электронным ударом. Скорость процесса равна $\nu_i N_e$, где $\nu_i$ – частота ионизации, $N_e$ – концентрация электронов. Частота ионизации является быстро растущей функцией отношения $E/N$, где $E$ – напряженность продольного электрического поля в разрядном канале, $N$ – концентрация атомов газа.

2. Возбуждение атомов гелия при столкновениях с электронами. Скорость процесса – $\nu_{1,2}N_e$, где $\nu_{1,2}$ – суммарные частоты возбуждения электронным ударом из основного состояния в состояния $2^3S_1$, $2^1S_0$ соответственно.

3. Возбуждение атомов неона электронным ударом. Скорость процесса $\nu_3 N_e$, где $\nu_3$ – суммарная частота возбуждения атомов неона в метастабильное состояние $1s_5$. Частоты возбуждения атомов гелия и неона электронами – растущие функции $E/N$, построенные на основе численного решения кинетического уравнения Больцмана для электронов.

4. Нерезонансная передача возбуждения от метастабильных атомов He к атомам Ne. Скорости соответствующих процессов представляют собой произведения $K_{1-3}N_{\mathrm{NE}}N_{m1}$, $K_{2-3}N_{\mathrm{NE}}N_{m2}$, в которых $N_m$ – концентрации метастабильных атомов гелия в состояниях $2^3S_1$, $2^1S_0$, $N_{\mathrm{NE}}$ – концентрация атомов неона в основном состоянии.

5. Ступенчатая ионизация при столкновениях метастабильных атомов с электронами. Скорость процесса $k_s N_e N_m$, $N_m$ – концентрация метастабильных атомов, $k_s$ – константа скорости ступенчатой ионизации.

6. Ионизация при столкновениях метастабильных атомов (хемоионизация). Скорости соответствующих процессов равны $K_m N_m^2$.

7. Диффузия метастабильных атомов на стенку разрядного канала. Скорость процесса равна отношению $N_m/\tau_d$.

8. Ионизация при столкновениях метастабильных атомов с атомами примесей (реакция Пеннинга). Скорость процесса – $\nu_p N_m$, частота $\nu_p = k_p N_p$ – произведение концентрации атомов примесей $N_p$ и константы скорости Пеннинг-процесса $k_p$.

9. Диффузия электронов на стенку разрядного канала в самосогласованном поперечном поле пространственного заряда. Скорость процесса равна $\nu_l N_e$, где $\nu_l$ – частота ухода электронов на стенку разрядного канала.

Для расчета комплексного сопротивления в систему уравнений баланса (7)–(9) необходимо подставить сумму стационарного решения и слабого гармонического возмущения, для поиска комплексных амплитуд которого достаточно линейного приближения. Такой подход позволяет количественно разделить вклады в отрицательное динамическое сопротивление плазмы процессов ионизации метастабильных атомов и переходного характера диффузии электронов. В уравнение баланса для электронов включена зависимость коэффициента поперечной диффузии от их концентрации и являющаяся одним из механизмов формирования падающей ВАХ положительного столба. Решение системы уравнений хотя и приводит к частотной зависимости комплексного сопротивления вида (1), однако не позволяет описать экспериментально зарегистрированную температурную зависимость для инерционного элемента эквивалентной электрической схемы, отражающего вклад метастабильных атомов в ионизационный баланс (рис. 2).

В гелий-неоновом разряде константы скоростей столкновительных процессов с участием метастабильных атомов характеризуются сильной зависимостью от температуры в случаях передачи возбуждения от метастабильных атомов гелия в состояниях $2^3S_1$, $2^1S_0$ к атомам неона [15]. Возбужденные атомы неона после двух излучательных переходов попадают в одно из близко располо-

женных состояний группы 1*s*, два из которых метастабильные ($1s_3$, $1s_5$), а два других ($1s_2$, $1s_4$) – резонансные. Чтобы отразить температурную зависимость в системе дифференциальных уравнений, описывающих процессы возбуждения, девозбуждения и ионизации атомов, включены уравнения для концентраций атомов в каждом из перечисленных выше состояний неона и гелия; использована информация о соответствующих константах скоростей, содержащаяся в [15, 16]. В результате полученные решения для суммы концентраций атомов неона и гелия, находящихся в метастабильных состояниях, характеризуются быстрым уменьшением ее величины при росте температуры. Описанная выше последовательность столкновительных и оптических процессов приводит к передаче возбуждения от гелия в метастабильных состояниях к неону в резонансных, последний переходит в основное состояние в результате испускания вакуумного ультрафиолетового излучения, диффундирующего к стенкам разрядного канала.

В соответствии с результатами работы [9] в систему уравнений баланса необходимо включить ионизацию метастабильных атомов неона и гелия при их столкновениях с атомами и молекулами посторонних примесей (реакцию Пеннинга), даже если их парциальное давление составляет порядка 1 Па и менее. Чтобы количественно охарактеризовать вклад реакции Пеннинга в ионизационный баланс удобно использовать в качестве дополнительного параметра частоту Пеннинг-ионизации, равную количеству ионизаций, приходящихся в среднем на один метастабильный атом.

## ОПРЕДЕЛЕНИЕ ФАКТОРОВ, ВЛИЯЮЩИХ НА ВЕЛИЧИНУ ТОКА ГОРЕНИЯ РАЗРЯДА

Уменьшение тока горения приводит к увеличению ресурса эксплуатации, а также к уменьшению ионного потока на катод и, как следствие, к более медленному распылению. На разрядных промежутках с уменьшением тока разряда происходит рост напряжения горения, так как ВАХ имеет падающий вид и мощность, рассеиваемая на разрядном промежутке, уменьшается, но незначительно.

Таким образом, уменьшение тока разряда необходимо для увеличения ресурса и уменьшения нестабильности дрейфа выходного сигнала лазерного гироскопа [17, 18]. Токи в плечах кольцевого лазера выровнены с высокой степенью точности (±20 мкА), но плечи кольцевого лазера идентичными не являются. Напряжение горения в плечах разное из-за свойств разряда в каналах, так как газовый разряд в каналах не одинаков, напряжение горения в каждом из каналов свое. В процессе работы разность напряжений горения разряда в каналах изменяется и по абсолютной величине увеличивается из-за выделения посторонних примесей. Потенциальная степень загрязнения стенок разрядных каналов посторонними примесями полностью не устраняется. Эта степень загрязнения для разных плеч разная в силу как случайных обстоятельств, так и технологических особенностей откачки.

Плечи кольцевого лазера не идентичны (допуск по диаметру канала 10 мкм), выделение примесей в газоразрядный канал разное из-за ионной бомбардировки стенок канала. Ионы ускоряются электрическим полем и током, чем больше сила тока, тем выше интенсивность ионной бомбардировки. Процессы, происходящие в разрядных каналах, связаны с загрязнением газовой смеси и будут изменяться с течением времени в разных плечах по-разному. Следовательно, падение напряжения электрического поля в положительном столбе в разных каналах происходит по-разному, и эта разница будет неизбежно изменяться с течением времени. Токи разряда в плечах выровнены, а движение атомов газа под действием газового разряда не прекращается, и разница в скорости перемещения атомов будет разной из-за разницы в электрических полях. Таким образом, остается сдвиг нуля выходной характеристики лазерного гироскопа (далее – сдвиг нуля), который представляет собой выходной сигнал гироскопа в отсутствии входной скорости [19, 20]. Сдвиг нуля не стабилен, испытывает флуктуации, так как разница в электрических полях изменяется во времени, что является результатом нестабильности дрейфа выходного сигнала лазерного гироскопа, приводящее к медленному изменению сдвига нуля лазерного гироскопа. Временно́й масштаб этих изменений составляет 1000–10000 ч. С другой стороны, при равенстве токов в плечах напряжение горения разное, следовательно, выделяемая токовая мощность разная и приводит к различной температуре и концентрации атомов газа. Разница температур также приводит к сдвигу нуля. Так как эта разница неизбежно изменяется, то это изменение приводит к нестабильности дрейфа выходного сигнала лазерного гироскопа.

Экспериментально подтверждено, что сдвиг нуля из-за разницы температур и сдвиг нуля из-за разной напряженности полей имеют противоположные знаки. Установка температуры в плечах процесс инерционный, возникающий с задержкой примерно в 1 ч, следовательно, смещение сдвига нуля сначала в одну, потом в другую сторону. Эти процессы происходят в течение нескольких часов, а стандартное условное время полета – 8 ч. Единственная возможность борьбы с этими эффектами – это уменьшение тока горения разряда.

Результаты анализа устойчивости симметричного двухплечевого разряда в кольцевых гелий-неоновых лазерах с помощью модифицированной модели представлены на рис. 5, 6 для плоскости параметров “ток разряда–температура”.

Кольцевой лазер работает при токе горения разряда, усиление при котором в два раза превы-

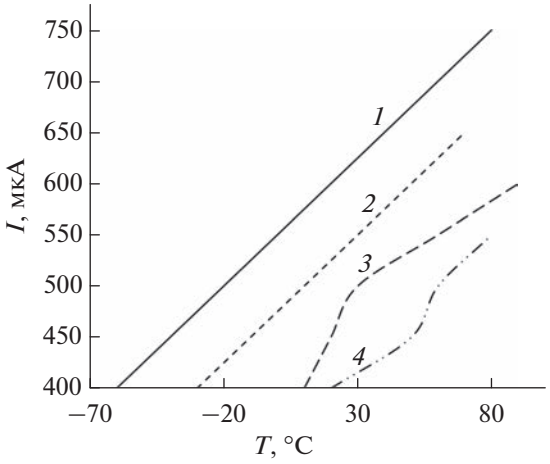


**Рис. 5.** График устойчивости симметричного двухплечевого разряда в кольцевом гелий-неоновом лазере, построенный на плоскости параметров “ток разряда – температура”; *1* – $C_{in}$ = 3 пФ, $\nu_p$ = 12000 1/с; *2* – $C_{in}$ = 1.5 пФ, $\nu_p$ = 12000 1/с; *3* – $C_{in}$ = 3 пФ, $\nu_p$ = = 14000 1/с; *4* – $C_{in}$ = 1.5 пФ, $\nu_p$ = 14 000 1/с, где $C_{in}$ и $\nu_p$ входная емкость и скорость реакции Пеннинга соответственно.

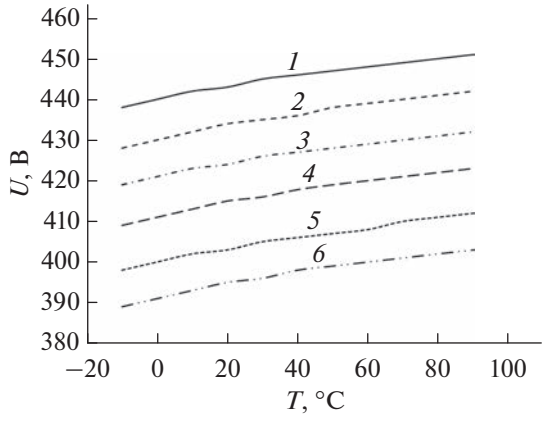


**Рис. 6.** Зависимость напряжения горения разряда в кольцевом гелий-неоновом лазере от температуры: *1* – *I* = 500 мкА, $\nu_p$ = 12000 1/с; *2* – *I* = 500 мкА, $\nu_p$ = = 14000 1/с; *3* – *I* = 600 мкА, $\nu_p$ = 12000 1/с; *4* – *I* = = 600 мкА, $\nu_p$ = 14000 1/с; *5* – *I* = 750 мкА, $\nu_p$ = 12000 1/с; *6* – *I* = 750 мкА, $\nu_p$ = 14000 1/с, где *I* – ток разряда, $\nu_p$ – скорость реакции Пеннинга.

шает потери, что является критерием выбора тока горения разряда [20]. Изменять величину тока разряда в зависимости от температуры необходимости нет, это усложняет систему, ухудшая эксплуатационную надежность. Экспериментальные измерения комплексных сопротивлений и синтез эквивалентных схем положительного столба, подтвердили, что порог неустойчивости кольцевого лазера зависит от температуры определенным образом: с увеличением температуры порог неустойчивости по току становится ближе к рабочему. Возникает вопрос, из каких соображений нужно выбрать величину тока, необходим определенный математический аппарат – модель положительного столба газового разряда, содержащая уравнения баланса для концентрации электронов и метастабильных атомов. Экспериментально решить этот вопрос в полной мере не удается, а модель это позволяет. Таким образом, мы убедились в адекватности описания эксперимента используемой модели.

При эксплуатации кольцевого лазера причин, вызывающих нестабильную работу, может быть много, они связанны с обработкой сигнала, процессами в электрической цепи и др. В настоящей работе проведена проверка возможных причин нестабильной работы кольцевого гелий-неонового лазера.

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Кольцевые гелий-неоновые лазеры, которые используют в бесплатформенных инерциальных навигационных системах, должны обеспечивать регистрацию угловых скоростей в широком диапазоне температур продолжительное время. В настоящее время существует тенденция снижения рабочего тока в этих приборах и соответственно увеличения срока службы. Однако разрядный промежуток кольцевых гелий-неоновых лазеров включает два протяженных участка положительного столба, имеющих отрицательное динамическое сопротивление. Абсолютные величины этих сопротивлений растут по мере уменьшения тока, что создает предпосылки развития неустойчивости электрической цепи и самовозбуждения колебаний тока и напряжения.

Разработан метод определения порога для развития неустойчивости газового разряда в кольцевом гелий-неоновом лазере, учитывающий распределенную емкость “положительный столб–заземленный экран”. В разработанном подходе к анализу устойчивости, положительный столб разряда заменен эквивалентной схемой, содержащей последовательное соединение отрицательного динамического сопротивления ρ и параллельных *RL*-цепочек. Синтезировать эквивалентную схему позволяют экспериментальные исследования линейной реакции газоразрядной плазмы на слабые гармонические возмущения, представленные в форме частотных зависимостей комплексного сопротивления *Z* положительного столба.

Расчет порога развития неустойчивости в электрической цепи двухплечевого разряда лишь на основе экспериментально зарегистрированной частотной зависимости комплексного сопротивления положительного столба не позволяет распространить количественный анализ на условия за пределами диапазона условий, в котором выполнены измерения. Чтобы преодолеть данное ограничение, препятствующее поиску рабочего тока, при котором развитие неустойчивости исключено для всего температурного диапазона эксплуатации кольцевых гелий-неоновых лазе-

ров, разработана модель, описывающая положительный столб газового разряда.

Нестабильность дрейфа выходного сигнала лазерного гироскопа вследствие переноса газа в каналах кольцевого гелий-неонового лазера под действием газового разряда обусловлена изменениями напряженности продольного электрического поля в зависимости от концентрации посторонних примесей в активной среде и снижается при уменьшении тока разряда.

Рост температуры газового наполнения кольцевого гелий-неонового лазера сопровождается изменением концентрации метастабильных атомов в положительном столбе и, как следствие, увеличением частоты изменения знака у действительной части его комплексного сопротивления.

Пороговое значение тока разряда в кольцевом гелий-неоновом лазере, при котором стационарное состояние электрической цепи теряет устойчивость, является монотонно возрастающей функцией температуры газового наполнения.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ


1. *Kolbas Yu.Yu., Grushin M.E., Gorshkov V.N.* // Quantum Electronics. 2018. V. 48. № 3. P. 283.
2. *Измайлов Е.А., Кухтевич С.Е., Тихомиров В.В., Стафеев Д.В., Фомичев А.В.* // Гироскопия и навигация. 2015. № 2. С. 89.
3. *Колбас Ю.Ю., Грушин М.Е., Горшков В.Н.* // Квантовая электроника. 2018. Т. 48. № 3. С. 283.
4. *Грановский В.Л.* Электрический ток в газах. Установившийся ток. М.: Наука, 1971.
5. *Golubovskii Y.B., Nekuchaev V.O., Porokhova I.A.* // Electron Kinetics and Applications of Glow Discharges. Plenum Press, 1998. P. 137.
6. *Дао Х.Н., Климаков В.В.* Механизмы нестабильности “сдвига нуля” лазерного гироскопа // Сборник трудов международной научно-технической конференции “I Современные технологии в науке и образовании”. 2017, Рязань. С. 262–265.
7. *Климаков В.В., Молчанов А.В., Улитенко А.И., Чиркин М.В.* // Вестник РГРТУ. 2012. № 39-2. С. 48.
8. *Улитенко А.И., Климаков В.В., Молчанов А.В., Чиркин М.В.* // Радиотехника. 2012. № 3. С. 171.
9. *Молчанов А.В., Морозов Д.А., Устинов С.В., Чиркин М.В.* // Вестник РГРТУ. 2015. № 54-2. С. 115.
10. *Ермачихин А.В., Литвинов В.Г.* // Приборы и техника эксперимента. 2018. С. 118. https://www.doi.org/10.7868/S0032816218020027
11. *Дао Х.Н., Климаков В.В., Молчанов А.В., Чиркин М.В.* // Вестник РГРТУ. 2017. № 59. С. 136. https://www.doi.org/10.21667/1995-4565-2017-59-1-136-144
12. *Аллан Д.У.* // Гироскопия и навигация. 2015. № 4. С. 3. https://www.doi.org/10.17285/0869-7035.2015.23.4.003-028
13. *Авиев А.А., Енин В.Н., Санеев И.В.* // Наука и образование: научное издание МГТУ им. Н.Э. Баумана. 2016. № 6. С. 145.
14. *Кузнецов А.Г., Молчанов А.В., Чиркин М.В., Измайлов Е.А.* // Квантовая электроника. 2015. Т. 45. № 1. С. 78.
15. *Виноградов В.И., Елецкий А.В.* // Опт. и спектр. 1974. Т. 37. С. 850.
16. *Виноградов В.И., Елецкий А.В.* // Опт. и спектр. 1987. Т. 62. С. 51.
17. *Поликовский Е.Ф., Молчанов А.В., Кремер В.И.* Исследование случайного дрейфа лазерного гироскопа с вибрационной частотной подставкой // Материалы 3-го Международного симпозиума “Аэрокосмические приборные технологии”. 2–4 июня 2004, Санкт-Петербург, Россия. С. 28.
18. *Молчанов А.В., Суминов В.М., Чиркин М.В.* // Авиакосмическое приборостроение. 2004. № 9. С. 12.
19. *Aronowitz F.* // Opt. Gyros Appl. 1999. P. 3-1.
20. *Лукьянов Д.П., Распопов В.Я., Филатов Ю.В.* Прикладная теория гироскопов. СПб.: ГНЦ РФ ОАО “Концерн “ЦНИИ “Электроприбор”, 2015. 316 с.


# Stability of Bilateral Discharge in the Ring Laser


**M. V. Chirkin[1], S. V. Ustinov[1, *], V. Yu. Mishin[1], A. E. Serebryakov[1]**

*[1]Ryzan State Radioengineering University, Ryazan, 390005 Russia*

**e-mail: ustinow62@yandex.ru*



A method has been developed for determining the threshold for the development of instability of a gas discharge in a ring helium-neon laser, taking into account the distributed capacitance “positive pole – grounded shield”. In the developed approach to stability analysis, the positive discharge of the column is replaced by an equivalent circuit, a series connection of a negative dynamic resistance ρ and balanced *RL*-circuits. An equivalent circuit can be synthesized by experimental studies of the linear response of a gas-discharge plasma to weak harmonic perturbations, presented in the form of frequency dependences of the complex resistance *Z* of a positive column. The calculation of the instability development threshold in the electrical circuit of a two-arm discharge only on the basis of the experimentally recorded frequency dependence of the complex resistance of the positive column does not allow one to extend the quantitative analysis to conditions outside the range of conditions in which the measurements were performed. To overcome this limitation, which hinders the search for the operating current, in which the development of instability is excluded for the entire temperature range of operation of ring helium-neon lasers, a model has been developed that describes the positive column of the gas discharge. The boundary of the unstable state of a two-arm gas discharge in the space of parameters is found: resistance of ballast resistors, temperature, mounting capacitance. The results obtained make it possible to maintain a two-arm DC discharge in a given range of temperature variation.



**Keyword:** ring laser, delayed process, ionization instability, positive column, bilateral dc discharge.

УДК 621.455

# ОПТИМИЗАЦИЯ ГЕОМЕТРИИ КОНСТРУКЦИИ ВЫСОКОЧАСТОТНЫХ ДВИГАТЕЛЕЙ И ИОННЫХ ИСТОЧНИКОВ

© 2023 г. В. К. Абгарян[a, *], А. В. Мельников[a], А. Ю. Купреева[a], О. Д. Пейсахович[a]

[a]Научно-исследовательский институт прикладной механики и электродинамики Московского авиационного института (национального исследовательского университета), Москва, 125080 Россия

*e-mail: vka.mai@mail.ru

Поступила в редакцию 20.05.2022 г.
После доработки 21.06.2022 г.
Принята к публикации 21.06.2022 г.

В статье изложены результаты расчетов оптимальной геометрии конструкции одного из типов источников квазинейтральной плазмы. Рассмотрена схема ионного источника с индуктивным разрядом плазмы, образуемым и поддерживаемым с помощью высокочастотного электромагнитного поля с частотой порядка 1 МГц. С помощью численного моделирования проведена совместная оптимизация профилей поверхностей основных узлов конструкции, а именно разрядной камеры и электродов ионно-оптической системы. Расчеты выполняли с помощью разработанной ранее инженерной модели индуктивного разряда в плазме. Критериями оптимизации являлись тяга и величина извлекаемого из источника ионного тока, определяемые из расчетных распределений электронной плотности и температуры электронов в объеме разрядной камеры. Оптимизационные расчеты проведены для ионного источника диаметром 16 см с разрядными камерами, поверхность которых имеет форму сегментов сферы. Результаты расчетов тяги представлены в сравнении с величинами, рассчитанными для базовой конфигурацией схемы ионного источника с полусферической разрядной камерой и плоской ионно-оптической системой. Получено существенное увеличение величины извлекаемого ионного тока и тяги в найденной оптимальной конфигурации ионного источника.

**Ключевые слова:** высокочастотный источник ионов, низкотемпературная плазма, разрядная камера, электроды ионно-оптической системы, высокочастотный индуктор, моделирование.

**DOI:** 10.31857/S1028096023050023, **EDN:** KUZDAY

## ВВЕДЕНИЕ

Ионные источники достаточно давно применяют в ионно-плазменных технологиях, в основном, в микроэлектронике при ионно-плазменной обработке различных поверхностей, например, с целью формирования нужного рельефа поверхностей или направленной модификации физических свойств приповерхностных слоев технологических материалов [1].

В космической технике ионные источники используют для получения тяги, образующейся при ускорении плазменного потока до скоростей в несколько десятков км/с. Плазменные двигатели такого типа, называемые также ионными двигателями, являются двигателями малой тяги. В соответствии со своими техническими характеристиками они могут быть применены для решения ряда транспортных задач в космических технологиях в качестве основных узлов двигательных установок космических аппаратов. В настоящее время ионные двигатели используют для решения задач коррекции и поддержания орбиты космических аппаратов в околоземном пространстве. Однако практически все ведущие космические державы рассматривают применение ионных двигателей на борту космических аппаратов, разрабатываемых для эксплуатации в дальнем космосе.

В списке завершенных к настоящему времени – успешные миссии Hayabusa-1 и Hayabusa-2 [2], выполненные Японским космическим агентством JAXA, в которых в качестве маршевых были использованы ионные двигатели μ10. Также отметим миссию агентства NASA Deep Space 1, целью которой был полет к астероиду Веста, в которой в качестве маршевой установки использовали ионный двигатель NSTAR [3].

Существуют три конкурирующих между собой технологии ионных двигателей и источников ионов, различающиеся по способу получения и поддержания плазменного разряда в разрядной камере: ионные двигатели Кауфмана, основанные на разряде постоянного тока [4–7]; высокочастотные (ВЧ) источники ионов и двигатели с индуктивным радиочастотным разрядом (диапазон частот возбуждающего электромагнитного

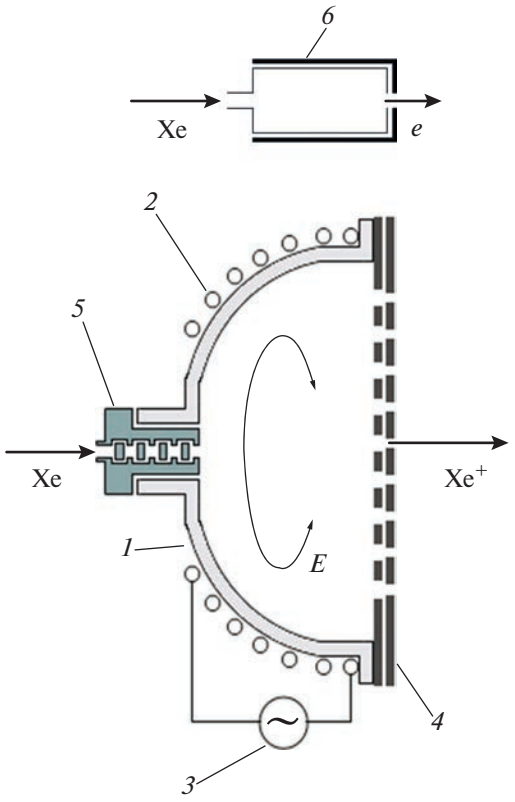


**Рис. 1.** Основные элементы конструкции в схеме высокочастотного источника ионов с полусферической разрядной камерой и плоскими электродами: керамическая газоразрядная камера (*1*); ВЧ индуктор (*2*); ВЧ генератор (*3*); ионно-оптическая система (*4*); газоввод (*5*); катод-нейтрализатор (*6*).

поля 0.5–2.0 МГц) [8]; сверхвысокочастотные ионные двигатели с разрядом плазмы с частотой электромагнитного поля более 2 ГГц [9, 10].

Среди перечисленных наибольшее распространение получила технология ионных двигателей постоянного тока, которую широко используют в NASA, например, в космических ионных двигателях XIPS и NEXT. В Европе активно применяют двигатели как постоянного тока, так и ВЧ. Автором схемы последних является доктор Хорст Леб, Германия [11], такие ВЧ ионные двигатели называют “RIT” (Radio-Frequancy Ion Thruster). Сверхвысокочастотные ионные двигатели успешно используют в космическом агентстве Японии (JAXA).

## КОНСТРУКЦИЯ И ПРИНЦИП ДЕЙСТВИЯ ИСТОЧНИКОВ ИОНОВ С ВЫСОКОЧАСТОТНЫМ НАГРЕВОМ ПЛАЗМЫ

Различные схемы ионных источников имеют много общего как в конструкции составляющих ее элементов, так и в физике протекающих процессов. Во всех схемах ионных источников в разрядной камере образуется разряд низкотемпературной плазмы с температурой электронов $T_e$ порядка 2–5 эВ. Извлечение положительных ионов из плазменного разряда и их дальнейшее ускорение осуществляется с помощью ионно-оптической системы, состоящей из двух или более электродов, между которыми приложено ускоряющее электростатическое напряжение. Электроды ионно-оптической системы представляют собой тонкие сетки с большим количеством (до нескольких тысяч) соосных отверстий, через которые извлекаются из разряда положительные ионы рабочего газа и ускоряются в промежутке между электродами ионно-оптической системы до энергий в несколько кэВ. Выходящий из ионного источника поток плазмы используют по назначению – для обработки поверхностей в наземных технологиях или получения тяги в космической технике.

В предлагаемой работе рассмотрена схема ионного источника с высокочастотным разрядом плазмы [12]. В состав конструкции ВЧ ионного источника входят следующие основные элементы (рис. 1): керамическая газоразрядная камера *1*; ВЧ индуктор *2*, выполненный в виде медной спирали; питающий его ВЧ генератор *3*; ионно-оптическая система *4*, состоящая из эмиссионного и ускоряющего электродов, расположенных на расстоянии порядка 1 мм; газоввод *5* и катод-нейтрализатор *6*.

В ВЧ источнике ионов используют индуктивный разряд плазмы, для образования которого в индуктор подают ток с частотой до нескольких МГц, генерирующий в разрядной камере переменное электромагнитное поле, которое поддерживает плазменный разряд. Образующиеся в разряде положительные ионы рабочего газа извлекаются из плазмы в разрядной камере так же, как и в других схемах сеточных ионных источников, через отверстия в электродах ионно-оптической системы. После добавления электронов из катода-нейтрализатора формируется выходящий поток квазинейтральной плазмы, в котором ионы рабочего газа имеют энергии до нескольких кэВ. Подробное описание физических процессов, протекающих в ионных источниках, изложено, например, в [13].

## ОСНОВНЫЕ ФИЗИЧЕСКИЕ ХАРАКТЕРИСТИКИ ПЛАЗМЫ В РАЗРЯДЕ

В данной работе рассматривается применение ксеноновой плазмы, поскольку ксенон в настоящее время используют в качестве рабочего газа в подавляющем большинстве известных ионных двигателей. В последнее время значительные усилия направлены для поиска альтернативного, более дешевого рабочего тела при сохранении требуемых эксплуатационных характеристик [14–16].

Ионизация атомов ксенона осуществляется электронным ударом. Также между компонентами плазмы – электронами, ионами и нейтральными атомами – в разряде происходят различные виды упругих и неупругих столкновений с характерными значениями сечений столкновений порядка $10^{-19}$ м$^{-2}$. Более высокое значение, порядка $10^{-18}$ м$^{-2}$, имеет сечение резонансной перезарядки ионов на нейтральных атомах [17]. Процесс перезарядки состоит в переходе электрона с нейтрального атома на ион, в результате чего ион нейтрализуется. Перезарядка происходит без изменения скоростей сталкивающихся частиц.

Длины свободного пробега $\lambda$ между столкновениями различных типов можно оценить по известному соотношению:

$$\lambda = 1/n\sigma, \quad (1)$$

где $n$ и $\sigma$ – соответствующие концентрации частиц и сечения выбранного типа взаимодействий.

Концентрация заряженных частиц $n_e$ в разрядной камере ионных источников такого типа – ионов и электронов – составляет порядка ~$10^{16}$–$10^{17}$ м$^{-3}$. Концентрация нейтральных атомов рабочего газа составляет $10^{18}$–$10^{19}$ м$^{-3}$. То есть степень ионизации плазмы достаточно низкая и находится на уровне 1–2%.

Длины пробега между столкновениями для всех видов взаимодействий между частицами, кроме кулоновских, имеют значения $\lambda > 0.5$ м. В настоящей работе рассмотрен ионный источник с разрядной камерой диаметром $L = 16$ см, т.е. длины свободного пробега значительно превосходят размеры камеры. Таким образом, для всех видов столкновений между компонентами плазмы, кроме кулоновских, число Кнудсена $\mathrm{Kn} = \lambda/L > 1$. Это означает, что в камере реализуется свободномолекулярный режим течения плазмы.

Температура электронов $T_e$ в плазме разряда, как указано выше, составляет 2–5 эВ, в то время как нейтральные атомы рабочего газа находятся в равновесии со стенками разрядной камеры, и поэтому имеют температуру, равную температуре стенок камеры и составляющую около 300–400°C, что соответствует энергии около 0.05 эВ. Таким образом, температура электронов значительно превышает температуру нейтральных атомов рабочего газа и, следовательно, в разрядной камере отсутствует термодинамическое равновесие, поскольку различные компоненты плазмы имеют разную среднеквадратическую температуру.

Суммируя вышеизложенное, можно заключить, что в ВЧ ионном источнике реализуется индуктивный разряд квазинейтральной разреженной низкотемпературной, существенно неравновесной плазмы с малой степенью ионизации.

## ПОТЕРИ МОЩНОСТИ В ВЫСОКОЧАСТОТНЫХ ИОННЫХ ИСТОЧНИКАХ

Переменный ток в цепи индуктора формирует ВЧ электромагнитное поле в разрядной камере. При характерных для данного типа источников ионов значениях амплитуды индукции переменного магнитного поля в несколько мТл и амплитуды напряженности вихревого электрического поля в несколько В/см происходит ускорение только электронов плазмы, которые поглощают вкладываемую ВЧ мощность и ионизуют атомы рабочего газа путем электронного удара. Образующиеся в результате такого рода ударов ионы практически не воспринимают ВЧ электрическое и магнитное поля. Ионы медленно (относительно электронов) дрейфуют в самоорганизующемся в плазме разряда самосогласованном стационарном электростатическом поле купольного типа, с потенциалом, спадающим от центра плазмы к ее границам, где на поверхностях, граничащих с разрядом, происходит сток компонентов плазмы – ионов и электронов.

Ионы, движущиеся в сторону выходного сечения двигателя, где расположена ионно-оптическая система, формируют выходящий ионный поток. Другая часть ионов дрейфует в электростатическом поле в направлении стенок разрядной камеры. Ионы ускоряются до энергий около $6T_e$ (для ксенона) в пристеночном слое плазмы и выпадают на поверхность разрядной камеры, что приводит к безвозвратным потерям входной ВЧ мощности источника. Данный вид потерь энергии на стенках разрядной камеры является наибольшим во всех типах ионных источников.

Эффективность ускорения ионов выходного пучка до энергий в несколько кэВ непосредственно в ионно-оптической системе близка к 100%, несмотря на то, что именно на ускорение ионов тратится большая часть всей подводимой к источнику ионов электрической мощности. Принято считать, что ускорение ионов протекает без заметных потерь. Доля ВЧ мощности, подаваемой в индуктор, в общем балансе потребляемой электрической мощности составляет 10–25% при различных режимах работы и размерах ионных источников. Соответственно, улучшение технических характеристик ВЧ ионных источников связано с сокращением нежелательных потерь вкладываемой в разряд ВЧ мощности.

Отметим, что полезная часть входной ВЧ мощности тратится только на ионизацию той части атомов рабочего газа, которые проходят через отверстия в ионно-оптической системе, и предварительное ускорение таких ионов до указанных выше энергий (около $6T_e$), что составляет около 20–30 эВ. Доля полезной части ВЧ мощности принципиально невелика для схемы ВЧ ионных источников и составляет около 15% для лучших

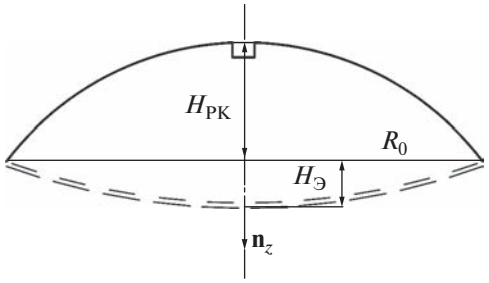


**Рис. 2.** Геометрические параметры разрядной камеры и ионно-оптической системы.

образцовы источников ионов данной схемы. Остальная часть ВЧ мощности уходит в конечном итоге на нагрев узлов конструкции, и небольшая часть мощности выносится из источника ионов в виде излучения.

## ТОК И ТЯГА ИОННЫХ ДВИГАТЕЛЕЙ И ИСТОЧНИКОВ ИОНОВ

Величина ионного тока $I_0$, выходящего из ионного источника, можно определить интегрированием по выходной поверхности $S_{ИОС}$ плотности тока Бома $j_B$ [13] с учетом коэффициента пропускания ионно-оптической системы $\sigma$, определяемого прозрачностью ионно-оптической системы и кривизной плазменного мениска собирающей поверхности $\gamma$ [18], а именно:

$$I_0 = \sigma\gamma \iint\limits_{S_{ИОС}} |\mathbf{j}_B| ds, \qquad (2)$$

где плотность тока Бома

$$j_B = K_B e n_e \sqrt{\frac{2T_e}{M}}. \qquad (3)$$

Здесь $K_B$ – коэффициент Бома, $e$ – заряд электрона, $M$ – масса атомов ксенона.

При расчете $\mathbf{j}_B$ использованы значения $n_e$ и $T_e$ в плазме вблизи поверхности эмиссионного электрода ионно-оптической системы до начала пристеночного дебаевского слоя.

Тяга ионного двигателя $T$ с учетом расходимости ионного пучка в общем виде можно выразить следующим образом:

$$T = \dot{m} V_i \overline{\cos\theta}, \qquad (4)$$

где $\dot{m}$ – массовый расход выходящего потока, $V_i$ – скорость истечения ионов, $\overline{\cos\theta}$ – усредненный по выходной поверхности ионно-оптической системы косинус угла между направлением движения ионов в точке выхода иона из источника и осью ионного источника.

Соотношение расхода $\dot{m}$ и тока $I_0$ следующее:

$$\dot{m} = \mu_{Xe} I_0 / e N_A, \qquad (5)$$

где $\mu_{Xe}$ – молярная масса атома ксенона, $e$ и $N_A$ – заряд электрона и число Авогадро.

С учетом (5), соотношение (4) можно привести к виду:

$$T = V_i \sigma\gamma \mu_{Xe} / e N_A \iint\limits_{S_{ИОС}} (\mathbf{j}_B, \mathbf{n}_z) d\sigma, \qquad (6)$$

где $\mathbf{n}_z$ – единичный вектор, параллельный оси двигателя $OZ$ (рис. 2).

В (2) и (6) использовано допущение, что из отверстий в электродах ионно-оптической системы произвольной формы – плоской, выпуклой или вогнутой – вытекает ионный поток по нормали к поверхности с плотностью тока $\mathbf{j}_B$. Также принято, что скорости истечения ионов $V_i$ одинаковы по всей выходной поверхности, поскольку, за исключением предварительного ускорения ионов в пристеночном слое до указанных выше энергий $6T_e$, они практически целиком определяются ускоряющей разностью потенциалов, приложенной между электродами ионно-оптической системы.

Таким образом, тяга двигателя $T$ и ионный ток $I_0$ можно рассчитать из соотношений (2) и (6) соответственно с использованием также (3), если известны распределения электронной плотности $n_e$ и электронной температуры $T_e$ в объеме разрядной камеры, точнее их значений вблизи эмиссионного электрода ионно-оптической системы.

## ЦЕНА ИОНА И ДРУГИЕ ХАРАКТЕРИСТИКИ ИОННЫХ ИСТОЧНИКОВ

Одной из важнейших технических характеристик ионных источников, наряду с величиной ионного тока $I_0$, извлекаемого из источника, является цена ионного тока:

$$C_I = P / I_0, \qquad (7)$$

где $P$ – мощность, затрачиваемая на образование и поддержание плазменного разряда. Здесь не рассмотрена часть мощности, затрачиваемая на предварительное ускорение ионов в ионно-оптической системе до энергий в несколько кэВ по указанной выше причине высокой эффективности использования этой части мощности.

В наиболее распространенных источниках ионов на постоянном токе (схема Кауфмана) мощность $P$ расходуется в основном на образование и ввод в разряд потока электронов с энергиями около 20 эВ с помощью катода, что превышает энергию ионизации атомов рабочего газа (в данном случае, ксенона) с энергией ионизации $E_{Xe} = 12.13$ эВ. Для ВЧ источников ионов входной мощностью считают подаваемую в индуктор ВЧ мощность, идущую на нагрев плазмы. Наимень-

шие значения $C_I$ для ионных двигателей на постоянном токе достигают уровня 250 Вт/А, в то время как для ВЧ ионных источников значения $C_I$ составляют выше 400 Вт/А.

Другой важной характеристикой источников ионов являются коэффициент использования рабочего тела, по которому можно определить массовую эффективность использования рабочего газа. Этот коэффициент достигает значений 0.5–0.6 в современных ионных источниках. Этот параметр является фактически отношением числа ионов, выходящих из источника в составе пучка в единицу времени, к числу атомов рабочего газа, вводимых в разрядную камеру через газоввод в тот же промежуток времени.

В случае ионных двигателей важной характеристикой в некоторых задачах является расходимость ионного пучка, в то время как для технологических источников ионов такого требования к ионному пучку, как правило, не предъявляют, и на первый план выходят значение ионного тока и ширина ионного пучка.

Существуют и другие способы оценки эффективности ионных источников, например, по массовым и энергетическим КПД. Перечисленные технические характеристики ионных источников в основном определяют соотношением полезной и теряемой частей входной мощности, которое в значительной мере зависит от соотношения площадей разрядной камеры и выходного сечения двигателя. Это достаточно очевидно, если учесть, что наибольшие потери вкладываемой в разряд ВЧ мощности происходят на поверхностях, граничащих с разрядом за счет выпадения на них ионов и электронов с их последующей нейтрализацией. Эти потери мощности пропорциональны площади ограничивающих разряд поверхностей, наибольшей из которых является поверхность разрядной камеры. В то время как величина извлекаемого из источника ионного тока $I_0$ пропорциональна площади выходного сечения с учетом коэффициента прозрачности электродов ионно-оптической системы. В случае анализа тяги $T$ также надо принимать во внимание расходимость ионного пучка.

## ОПТИМИЗАЦИЯ ГЕОМЕТРИИ РАЗРЯДНОЙ КАМЕРЫ И ЭЛЕКТРОДОВ ИОННО-ОПТИЧЕСКОЙ СИСТЕМЫ

На практике применяли разрядные камеры различной формы – от цилиндрической, как в первых моделях ВЧ ионных источников, до полусферической, конической и других форм. На стенках разрядной камеры происходит наибольшая часть потерь мощности разряда за счет выпадения на ее внутреннюю поверхность компонент плазмы – ионов, электронов и фотонов. Поэтому естественное стремление разработчиков ионных источников состоит в попытках уменьшить площадь поверхности разрядной камеры с целью улучшения технических характеристик.

Геометрия электродов ионно-оптической системы во всех схемах была выбрана плоской или близкой к ней, что позволяло обеспечить малую расходимость ионного пучка не более 4°–5°, что могло быть использовано в ряде задач. Например, в так называемой технологии Ion Beam Shepherd требуется максимально узкий ионный пучок для удаления космического мусора с геостационарной орбиты, где располагаются телекоммуникационные и другие спутники, на безопасные орбиты с помощью ионного пучка. При использовании этой технологии сервисный космический аппарат сближается с образцом космического мусора (отработавшие срок активного существования и не функционирующие космические аппараты) на расстояние порядка 20 м и за несколько суток плазменной струей своего ионного источника уводит объект с занимаемой орбиты на орбиту “захоронения” выше геостационарной, либо на более низкую орбиту, обеспечивающую последующее сгорание объекта в атмосфере Земли. Соответственно, необходимо использовать источник с узким пучком ионов, чтобы максимальная часть пучка попадала на поверхность удаляемого объекта, особенно с учетом указанного расстояния, на котором может безопасно размещаться сервисный космический аппарат в момент увода. Данная технология рассматривается как одна из применимых во всех космических державах [19].

В технологических ионных источниках требование к узости пучка ионов, как правило, не выдвигают, поскольку облучаемый образец можно расположить сколь угодно близко к ионному источнику.

При плоской геометрии электродов ионно-оптической системы поток атомов нейтрального газа, не ионизовавшихся в разряде и покидающих разрядную камеру через отверстия в ионно-оптической системе, очевидно, минимальный. Поэтому считается, что выбор плоских электродов позволяет поддерживать на должном уровне такие технические характеристики двигателя, как коэффициент использования рабочего тела и тяга $T$ двигателя, определяемая также и расходимостью ионного пучка, согласно выражению (6).

В ионных источниках и двигателях с диаметром разрядной камеры более 15 см, как правило, применяют электроды с ненулевой кривизной, причем как выпуклые, так и вогнутые. Но их применение обусловлено скорее стремлением избежать отрицательных последствий от неизбежной в ионных двигателях термомеханической деформации электродов, нагреваемых до температур 300–500°C. Кривизна электродов определяет, по крайней мере, направление термической деформации, от разрядной камеры или внутрь нее, в зависимости от исходной конфигурации, а плоские

тонкие поверхности электродов в этом случае являются неустойчивыми.

Выбор же той или иной геометрии разрядной камеры и электродов ионно-оптической системы, судя по публикациям, производили только из технологических соображений, что было связано с высокой стоимостью изготовления керамической разрядной камеры и тонких перфорированных электродов.

С физической точки зрения, выбор профиля поверхности разрядной камеры можно сделать с учетом целесообразности уменьшения площади, а, следовательно, и кривизны поверхности камеры для сокращения потерь ВЧ мощности на ее стенках. Ранее [20] было отмечено, что переход от изначальной цилиндрической формы разрядной камеры к полусферической (рис. 1), привел к уменьшению цены ионного тока $C_I$ примерно на 25%. Принято, что целесообразно использовать выпуклые электроды ионно-оптической системы с поверхностью с небольшой кривизной с сохранением допустимой расходимости ионного пучка.

Наличие упрощенной инженерной модели расчета параметров плазмы в ВЧ ионных двигателях позволяет рассчитывать распределения в разрядной камере основных параметров плазмы ($n_e$ и $T_e$), а также практически все перечисленные выше характеристики источника ионов. Это позволяет в свою очередь поставить задачу об определении оптимальной формы плазменного разряда, ограниченного в пространстве поверхностями разрядной камеры и эмиссионным электродом ионно-оптической системы. Критерием оптимизации может быть тяга $T$ для ионных двигателей или величина ионного тока $I_0$ для технологических ионных источников, рассчитываемые из распределений $n_e$ и $T_e$. Такая оптимизационная задача была решена в рамках настоящей работы.

## ОСНОВНЫЕ ПОЛОЖЕНИЯ РАСЧЕТНОЙ МОДЕЛИ

Распределения $n_e$ и $T_e$ в объеме разрядной камеры рассчитывали с помощью инженерной численной модели расчета параметров плазмы в индуктивном разряде. При построении вычислительной модели были сделаны допущения, позволяющие в короткие сроки проводить оценочные расчеты без привлечения существенных вычислительных мощностей, таких как рабочие станции. Подробное описание модели выходит за рамки настоящей статьи, ниже приведены только основные аспекты. Более полное описание модели и результатов расчетов с ее использованием приведено в [21, 22].

Основные принятые в использованной модели допущения следующие. При описании заряженных частиц плазмы разряда считали, что функция распределения электронов по энергиям является максвелловской с температурой электронов $T_e$, одинаковой в объеме разряда. Во всем объеме разряда соблюдается условие квазинейтральности ($n_e = n_i$), где $n_i$ – объемная плотность ионов. В расчетах не учтены пристеночные процессы, такие как пристеночное падение потенциала, нарушение зарядового равновесия в дебаевском приповерхностном слое и прочее. В расчетах не учтены перезарядки ионов на нейтральных атомах и ион-электронные рекомбинации в объеме разряда. Нейтральные частицы имеют одинаковую температуру во всем объеме разрядной камеры, которая постоянна и равна температуре стенки разрядной камеры. Для описания поведения заряженных частиц плазмы использованы приближенные к магнитной гидродинамике соотношения. В расчетах использована упрощенная геометрия основных элементов ВЧ ионного двигателя (разрядной камеры, индуктора, газораспределителя и электродов ионно-оптической системы), без учета характеристик материалов, из которых они были изготовлены. Ионы и электроны, выпадающие на стенки разрядной камеры, рекомбинируют на стенках и возвращаются в объем плазмы в виде нейтральных атомов. В модели не учтено распространение электромагнитных волн в плазме. Положительные ионы, выходящие из источника ионов, двигаются по нормали к поверхности электродов ионно-оптической системы, т.е. процесс прохождения ионов через ячейки ионно-оптической системы детально не рассматривается.

В модели численным способом решается система уравнений из 24 уравнений, часть из которых относится к определению напряженностей электромагнитного поля, создаваемого ВЧ индуктором. Другие уравнения, в том числе и балансовые соотношения относительно параметров плазмы, являются известными выражениями, такими как уравнение неразрывности, диффузии ионов и другие.

## РАСЧЕТНЫЕ СХЕМЫ МОДЕЛЕЙ ИСТОЧНИКОВ ИОНОВ

Расчеты тяги двигателя и ионного тока выполняли для моделей ВЧ источников ионов с выходным диаметром ионного пучка $R_0 = 16$ см. Ионный двигатель такого размера можно отнести к двигателям средней мощности, составляющей несколько кВт. Его можно применять не только для поддержания орбит геостационарных спутников, но и для выполнения миссий в дальнем космосе. Уже существуют ионные двигатели с такой схемой и такого класса мощности, разработанные в Германии [23], это двигатели семейства RIT. Двигатель RIT-22 [24] имеет разрядную камеру с формой в виде усеченного конуса диаметром 22 см. Особо отметим относительно новый и продвигаемый на рынок компанией Airbus DS

GmbH ВЧ ионный двигатель RIT-2-X [25], размеры и форма которого не опубликованы. Однако по имеющимся в литературе фотографиям можно оценить его диаметр в диапазоне 25–28 см и предположить форму разрядной камеры, как выполненную в виде сегмента сферической поверхности с отношением высоты к радиусу разрядной камеры на уровне 0.5 (для полусферической разрядной камеры это отношение, очевидно, равно 1). В обоих указанных двигателях типа RIT использована ионно-оптическая система с небольшим прогибом наружу от разрядной камеры.

Выбор размера исследуемого ионного источника продиктован в числе других и тем обстоятельством, что в случае успеха в достижении тех же значений основных технических характеристик на двигателе меньших размеров (диаметром 16 см), такой бы двигатель имел бы неоспоримое преимущество в конкурентной борьбе.

На данном этапе исследований рассматривали поверхности разрядной камеры и электродов ионно-оптической системы из класса сферических поверхностей. Базовой являлась распространенная схема (рис. 1) с плоскими электродами и полусферической разрядной камерой. Вырезы в схемах в верхней части разрядной камеры во всех схемах обусловлены наличием газоввода.

В качестве варьируемых геометрических параметров выбрали высоту профиля разрядной камеры $H_{\text{РК}}$ и прогиб электродов ионно-оптической системы $H_{\text{Э}}$ (рис. 2). Удобнее пользоваться относительными высотой камеры и прогибом электродов:

$$h_{\text{РК}} = H_{\text{РК}}/R_0, \quad h_{\text{Э}} = H_{\text{Э}}/R_0. \tag{8}$$

Оптимизационные расчеты проводили для схем с различными параметрами $h_{\text{РК}}$ и $h_{\text{Э}}$. Изменение $h_{\text{РК}}$ в диапазоне от 1 до 0 означает изменение кривизны разрядной камеры от полусферической до плоской, а изменение относительного прогиба электродов $h_{\text{Э}}$ от 0 до 1 означает изменение формы электродов от плоской до полусферической. Расчеты проводили как с выпуклыми, так и с вогнутыми электродами.

## РЕЗУЛЬТАТЫ РАСЧЕТОВ. ОБСУЖДЕНИЕ

Целью расчетов являлось определение оптимальных значений параметров $h_{\text{РК}}$ и $h_{\text{Э}}$ схемы, при использовании которых значения тяги $T$ и ионного тока $I_0$ были бы наибольшими по отношению к тем же величинам, рассчитываемым для базовой схемы с полусферической камерой и плоскими электродами.

Для каждой схемы, т.е. для различных пар значений $h_{\text{РК}}$ и $h_{\text{Э}}$, с помощью модели плазменного разряда рассчитывали распределения в объеме камеры электронной плотности $n_e(r)$ и численное значение электронной температуры $T_e$. Далее с помощью выражений (2), (3) и (6) вычисляли значения ионного тока $I_0$ тяги $T$.

В численных расчетах для различных схем ВЧ источников ионов с диаметром выходного сечения 16 см использовали одинаковые значения вкладываемой ВЧ мощности $P_{\text{ВЧ}} = 270$ Вт, расхода рабочего газа $\dot{m} = 1$ мг/с, числа витков ВЧ индуктора $N = 8$ и их расположение относительно разрядной камеры.

В результате проведенной серии численных расчетов определены две схемы источника ионов с максимальными значениями ионного тока и тяги. Для схемы с максимальным значением ионного тока значения относительных высоты разрядной камеры и прогиба электродов составили:

$$h_{\text{РК}} = 0.3, \quad h_{\text{Э}} = 0.175. \tag{9}$$

Максимальное значение тяги соответствовало схеме с параметрами:

$$h_{\text{РК}} = 0.3, \quad h_{\text{Э}} = 0.12. \tag{10}$$

Максимальное превышение ионного тока $I_0$ составило около 14% по сравнению с базовой схемой. Максимальное увеличение тяги $T$ составило около 12%. На рис. 3 изображены распределение электронной плотности $n_e$ в разрядной камере базовой схемы и схемы с наибольшим значением ионного тока. На рис. 4 изображено распределение электронной плотности $n_e$ в разрядной камере схемы с наибольшим значением тяги.

Во всех схемах, для которых проводили расчеты, максимум концентрации плазмы наблюдали в верхней части камеры вблизи выреза для газоввода, через который осуществляется ввод рабочего газа в разрядную камеру. В этой области разрядной камеры концентрация нейтральных атомов является наибольшей и поэтому частота ионизации в данной области также максимальна.

Как видно из рис. 3б и рис. 4 значения $n_e$ в разрядной камере оказались значительно выше для обеих оптимальных схем по сравнению с базовой схемой. Соответственно, и значения $n_e$ вблизи выходной поверхности ионного источника, определяющие значения ионного тока и тяги источника, также оказались более высокими.

Наилучшие результаты по ионному току и тяге получены на схемах с выпуклыми электродами. Схемы с вогнутыми электродами показали меньшие значения.

На рис. 5 показана зависимость ионного тока и тяги в области их максимальных значений от прогиба электродов $H_{\text{Э}}$. Для наглядности результатов расчетов приведены значения ионного тока $I_0$ и тяги $T$ и по отношению к их значениям $I_0^{\text{opt}}$ и $T^{\text{opt}}$, соответственно, рассчитанным для схемы, где достигнуты максимальные значения тяги, изобра-

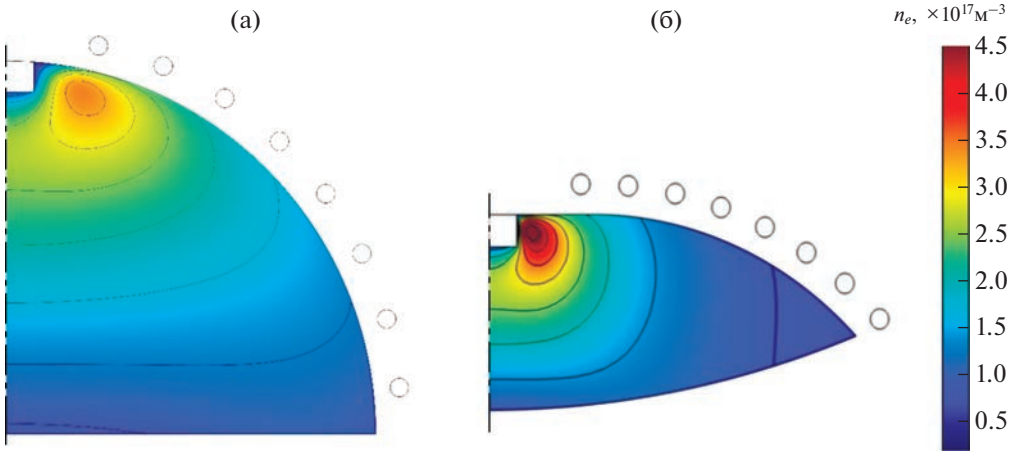


**Рис. 3.** Распределения электронной плотности $n_e$ в разрядной камере базовой схемы (а) и оптимальной схемы с наибольшим ионным током (б). Диаметр камеры 16 см.

женной на рис. 4. По оси $OX$ отложено отклонение прогиба электродов от значения прогиба, соответствующего схеме с максимальной тягой $T$, т.е.

$$\Delta H_Э = H_Э - H_{Э\max}. \quad (11)$$

Приведенному в (9) оптимальному значению $h_Э$ соответствует, очевидно, прогиб электронов ионно-оптической системы:

$$H_{Э\max} = 9.6 \text{ мм}. \quad (12)$$

Отметим, что зависимость ионного тока и тяги от прогиба электродов $H_Э$ достаточно слабая, поскольку достаточно заметное изменение $H_Э$ в приведенном на рис. 5 диапазоне прогиба электродов от 5.6 до 15.6 мм приводит к изменениям как ионного тока, так и тяги в пределах лишь 1.2%, что малозначительно. Практически весь прирост и по ионному току и по тяге на упомянутых уровнях 14 и 12%, соответственно, достигнут за счет перехода формы разрядной камеры от полусферической к поверхности со значительно меньшей кривизной. Выявленное в расчетах обстоятельство позволяет в дальнейших расчетах, например, для источников ионов других размеров и мощности выбрать удобную стратегию оптимизационных расчетов с точки зрения его объема. Сначала выбирают схему с прогибом электродов на уровне значений $h_Э$, приведенных в (9)–(10). Далее следует серия оптимизационных расчетов для поиска максимума по относительной высоте разрядной камеры $h_{РК}$. После фиксации найденного наилучшего значения $h_{РК}$ можно провести уточнение прогиба электродов $h_Э$. Таким образом, двумерную оптимизацию геометрических параметров источника ионов можно заменить на две последовательные одномерные процедуры. Такая стратегия значительно сокращает требуемые вычислительные мощности и время расчетов.

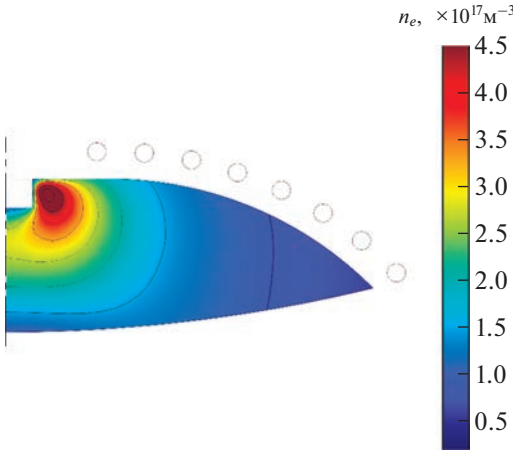


**Рис. 4.** Распределения электронной плотности в разрядной камере оптимальной схемы с наибольшим значением тяги. Диаметр камеры 16 см.

На рис. 5 отметим различие положения максимумов относительных значений ионного тока и тяги $\frac{T}{T^{\text{opt}}}$ и $\frac{I_0}{I_0^{\text{opt}}}$, которое объясняется увеличением расходимости ионного пучка заметных значениях прогибов электродов $h_Э$.

С ростом $h_Э$ увеличивается площадь электродов, через отверстия в которых непрерывно вытекают атомы рабочего газа, не ионизовавшиеся в разряде. Соответственно, можно было ожидать ухудшение массовой эффективности по сравнению со схемой с плоскими электродами. Однако в данной серии расчетов наоборот выявлено улучшение массовой эффективности на 14%, т.е.

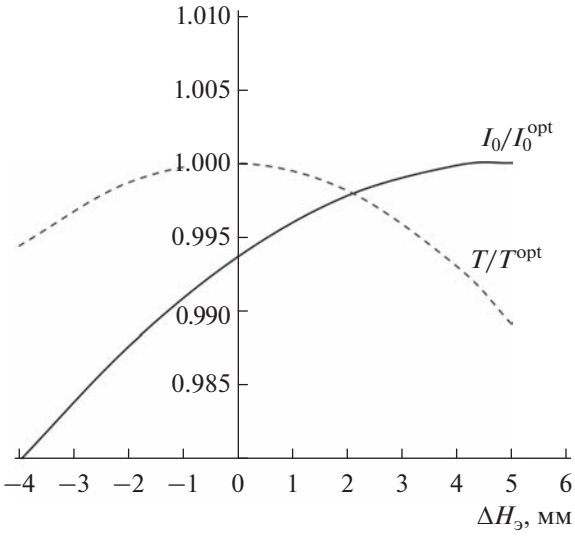


**Рис. 5.** Относительные тяга и ионный ток при различных прогибах электродов.

на примерно те же значения, что и в случае с ионным током $I_0$ и тягой $T$.

Цена ионного тока $C_I$ сократилась на 14% в оптимальной схеме с максимальным значением ионного тока по сравнению базовой схемой. Электронная температура повысилась с 5 до 7 эВ, что способствует повышению электронной плотности $n_e$ в плазме разряда.

Все это свидетельствует о лучшей организации плазменного разряда в обеих оптимальных схемах по сравнению с базовой, что подтверждается более высокими значениями электронных плотностей $n_e(r)$ во всем объеме разрядной камеры.

При дальнейших исследованиях будет расширен класс рассматриваемых поверхностей разрядной камеры и ионно-оптической системы за счет более сложных форм, например, эллипсоидальных. Наглядно видно на распределениях рассчитанных электронных плотностей $n_e$, изображенных на рис. 3б и 4, что плазма не заполняет углы камеры. Поэтому в будущих работах следует учесть это и сгладить углы по окружности сопряжения поверхностей разрядной камеры и электродов ионно-оптической системы.

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

С помощью инженерной модели выполнена серия оптимизационных расчетов тяги и ионного тока схем ВЧ ионного источника с диаметром 16 см с различными профилями поверхностей разрядной камеры и электродов ионно-оптической системы. Рассмотрены поверхности разрядной камеры и электродов ионно-оптической системы из класса сегментов сферических поверхностей. Варьировали кривизну поверхности разрядной камеры и величину прогиба электродов ионных источников. Определена область значений данных параметров, при которых расчетные значения ионного тока и тяги, превышают такие же значения, рассчитанные для базовой схемы с полусферической разрядной камерой и плоскими электродами ионно-оптической системы. Максимальное выявленное увеличение указанных характеристик ионного источника составило 12–14% при применении заметно выпуклых электродов ионно-оптической системы. При использовании оптимизированной схемы массовая эффективность источника ионов, несмотря на увеличение площади выходной поверхности, не уменьшилась, а наоборот увеличилась, что можно объяснить лучшей организацией плазменного разряда. Расчетами выявлено существенное увеличение электронной плотности в разряде в найденной оптимальных схемах конструкции ионного источника. Перечисленное позволяет утверждать, что конструкции семейства ВЧ ионных источников с разрядной камерой малой кривизны и заметно выпуклыми электродами ионно-оптической системы могут быть рассмотрены для практического применения в наземных технологиях и космической технике.

## БЛАГОДАРНОСТИ

Работа выполнена при поддержке гранта Российского научного фонда, проект № 22-29-01006.

**Конфликт интересов:** авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Kanarov V., Hayes A.V., Yevtukhov R., Vidinsky B., Navy A.* // Rev. Sci. Instrum. 1998. № 69. P. 874. https://www.doi.org/10.1063/1.1148742
2. Jet Propulsion Laboratory NASA. 2003. https://www.jpl.nasa.gov/missions/hayabusa Cited 10 April 2022
3. Jet Propulsion Laboratory NASA. 1998. https://www.jpl.nasa.gov/missions/deep-space-1-ds1 Cited 10 April 2022
4. *Van Noord J.* // In 43rd AIAA/ASME/SAE/ASEE Joint Propulsion Conference & Exhibit. 2007. P. 5218. https://www.doi.org/10.2514/6.2007-5218
5. *Van Noord J., Herman D.* // In 44th AIAA/ASME/SAE/ASEE Joint Propulsion Conference & Exhibit. 2008. P. 4526. https://www.doi.org/10.2514/6.2008-4526
6. *Васин А.И., Коротеев А.С., Ловцов А.С., Муравлев В.А., Шагайда А.А., Шутов В.Н.* // Труды МАИ. 2012. Т. 60. С. 8.
7. *Herman D.A.* // 57th Joint Army-Navy-NASA-Air Force (JANNAF) Propulsion Meeting. 2010. No. E-17447.
8. *Антропов Н.Н., Ахметжанов Р.В., Балашов В.В., Богатый А.В., Дьяконов Г.А., Могулкин А.И., Обухов В.А., Плохих А.П., Попов Г.А.* // Тезисы 14-й Меж-

дународной конференции “Авиация и космонавтика-2015”. 2015. С. 141.

9. *Tsukizaki R., Ise T., Koizumi H., Togo H., Nishiyama K., Kuninaka H.* // J. Propulsion and Power. 2014. V. 30. № 5. P. 1383. https://www.doi.org/10.2514/1.B35118
10. *Foster J., Haag T., Kamhawi H., Patterson M., Malone S., Elliot F.* // In 40th AIAA/ASME/SAE/ASEE Joint Propulsion Conference and Exhibit. 2004. P. 3812. https://www.doi.org/10.2514/6.2004-3812
11. *Loeb H.* // Astronautica Acta. 1962. V. 8. № 1. P. 49.
12. *Abgaryan V.K., Nadiradze A.B., Semenov A.A., Troshin A.E.* // J. Surf. Invest.: X-Ray, Synchrotron Neutron Tech. V. 13. 2019. № 6. P. 1054. https://www.doi.org/10.1134/S102745101906003X
13. *Goebel D.M., Katz I.* // Fundamentals of Electric Propulsion: Ion and Hall. N.Y.: John Wiley & Sons, 2008. P. 100.
14. *Абгарян В.К., Леб Х.В., Обухов В.А., Шкарбан И.И.* // Поверхность. Рентген., синхротр. и нейтрон. исслед. 2012. № 8. С. 70.
15. *Канев С.В., Кожевников В.В., Хартов С.А.* // Известия РАН. Энергетика. 2017. Т. 3. С. 21.
16. *Cifali G., Misuri T., Rossetti P., Andrenucci M., Valentian D., Feili D., Lotz B.* // 32nd International Electric Propulsion Conference. 2011. № 11. P 15.
17. *Девдариани А.З., Артамонова А.О., Беляев А.К.* // Письма в ЖТФ. 2020. Т. 46. Вып. 4. С. 45. https://www.doi.org/10.21883/PJTF.2020.04.49051.17990
18. *Абгарян В.К., Ахметжанов Р.В., Леб Х.В., Обухов В.А., Черкасова М.В.* // Поверхность. Рентген., синхротр. и нейтрон. исслед. 2013. №11. С. 82.
19. *Balashov V., Cherkasova M., Kruglov K., Kudriavtsev A., Masherov P., Mogulkin A., Obukhov V., Riaby V., Svotina V.* // Rev. Sci. Instrum. 2017. V. 88. № 8. P. 083304. https://www.doi.org/10.1063/1.4998247
20. *Holste K., Dietz P., Scharmann S., Keil K., Henning T., Zschätzsch D., Reitemeyer M., Nauschütt B., Kiefer F., Kunze F., Zorn J., Heiliger C., Joshi N., Probst U., Thüringer R., Volkmar C., Packan D., Peterschmitt S., Brinkmann K.-T., Zaunick H.-G., Thoma M.H., Kretschmer M., Leiter H.J., Schippers S., Hannemann K., Klar P.J.* // Rev. Sci. Instrum. 2020. V. 91. P. 061101. https://www.doi.org/10.1063/5.0010134
21. *Мельников А.В., Хартов С.А.* // Известия РАН. Энергетика. 2018. Т. 3. С. 4.
22. *Kanev S., Melnikov A., Nazarenko I., Khartov S.* // IOP Conference Series: Mater. Sci. Engineer. 2020. P. 012010. https://www.doi.org/10.1088/1757-899X/868/1/012010
23. *Porst, J.P., Kuhmann J., Kukies R., Leiter H.* // In Proceedings of the 34th International Electric Propulsion Conference. 2015.
24. *Leiter H.J., Kukies R., Porst J.P., Kuhmann J., Berger M, Rath M.,* // In 50th AIAA/ASME/SAE/ASEE Joint Propulsion Conference. 2014. P. 3421. https://www.doi.org/10.2514/6.2014-3421
25. *Porst J.P., Altmann C., Arnold C., Kuhmann J., Syring C., Leiter H.J., Berger M., Scholze F., Eichhorn C., Bundesmann C.* // 35th International Electric Propulsion Conference. 2017.

## Geometry Design Optimization of High-Frequency Ion Thrusters and Ion Sources

**V. K. Abgaryan[1, *], A. V. Melnikov[1], A. Yu. Kupreeva[1], O. D. Peisakhovich[1]**

*[1]Research Institute of Applied Mechanics and Electrodynamics of the Moscow Aviation Institute, Moscow, 125080 Russia*

**e-mail: vka.mai@mail.ru*

The article presents the results of the computational determination of the optimal design geometry of a certain type of quasi-neutral plasma source. The scheme of an ion source with an inductive plasma discharge formed and maintained by a radio-frequency electromagnetic field in a MHz frequency range is considered**.** The surface profiles optimization of the main design units – namely, gas discharge chamber and ion extraction system – was carried out via computational modelling. Calculations were carried out using the previously developed engineering model of inductive discharge in plasma. The optimization criteria are the thrust and the value of the ion current extracted from the source, determined from the calculated distributions of electron density and electron temperature within the discharge chamber. Optimization calculations were carried out for an ion source with a discharge chamber diameter of 16 cm on a type of surfaces that are segments of a spherical surface. The results of the thrust calculations are presented in relative values in comparison with the values calculated for the basic configuration of the ion source scheme with a hemispherical discharge chamber and a flat ion extraction system. A significant increase in the value of the extracted ion current and thrust in the determined optimal configuration of the ion source was obtained in comparison with the same values calculated for the basic configuration of the ion source with a hemispherical discharge chamber and flat grids of the ion extraction system.

**Keywords:** radio-frequency ion thruster, low-temperature plasma, discharge chamber, electrodes of the ion-optical system, high-frequency inductor, simulation.