

ИССЛЕДОВАНИЕ КЛАСТЕРИЗАЦИИ АТОМОВ И МОЛЕКУЛ В ИМПУЛЬСНОЙ ГАЗОДИНАМИЧЕСКОЙ СТРУЕ С ПОМОЩЬЮ ПИРОЭЛЕКТРИЧЕСКОГО ПРИЕМНИКА

Г. Н. Макаров^{a}, А. Н. Петин^b*

*^a Институт спектроскопии Российской академии наук
142190, Троицк, Московская обл., Россия*

*^b Троицкий институт инновационных и термоядерных исследований
142190, Троицк, Московская обл., Россия*

Поступила в редакцию 21 декабря 2007 г.

Методом времяпролетных измерений, выполненных с помощью неохлаждаемого пироэлектрического приемника (ПЭП), исследован процесс кластеризации ряда атомов и молекул в импульсной газодинамической струе. Метод основан на измерении амплитуды пироэлектрического сигнала, индуцированного на детекторе молекулярным (атомным) пучком, и скорости частиц в пучке в зависимости от давления газа над соплом. Кроме того, измерялось число молекул (атомов), выходящих из сопла за импульс. Описан метод и представлены результаты исследований по кластеризации He, Xe, CH₄, CO₂ и других газов. Рассмотрены особенности детектирования молекулярных и кластерных пучков с помощью ПЭП. Показано, что описываемый метод позволяет определять порог кластеризации в зависимости от давления газа над соплом. Установлены пороговые значения давлений, при которых начинается кластеризация частиц в струе. Найдены оптимальные условия для генерации интенсивных кластерных пучков.

PACS: 36.40.-c, 37.20.+j, 07.77.Gx, 47.60.Kz

1. ВВЕДЕНИЕ

Кластерные пучки являются объектом исследования большого числа экспериментальных и теоретических работ (см., например, [1–7] и приведенные в них ссылки). Особый интерес к исследованию кластеров связан с размерными эффектами. Кластеры представляют собой промежуточное звено между отдельными элементарными частицами (атомами и молекулами) и объемными жидкостью или твердым телом. Поэтому ожидается, что изучение структуры и динамики кластеров позволит установить минимальный предел на число частиц в кластере, при котором начинают проявляться характеристики объемного вещества. В экспериментах и на практике кластерные пучки используются для получения рентгеновского излучения и нейтронов при их возбуждении мощными ультракороткими лазерными импульсами, для осаждения тонких пленок и получения но-

вых материалов для микроэлектроники, а также для обработки поверхности (см., например, [4, 5, 8]). В последнее время интерес к кластерным пучкам сильно возрос в связи с их применением в нанотехнологии [9] для получения структур с заданными свойствами.

Существует много методов получения и исследования кластеров и кластерных пучков (см., например, работы [1–5, 7, 10–12] и приведенные в них ссылки). Наиболее распространенными методами получения кластеров и кластерных пучков являются сверхзвуковые газодинамические струи и лазерная генерация металлических кластеров. Для получения кластеров широко используются также агрегация газа, эрозия поверхности, распыление, лазерная абляция, импульсный дуговой разряд, плазменные методы [1–5, 11–14]. Подробный обзор методов получения и исследования кластеров и кластерных пучков можно найти, например, в работах [1–5, 7, 10–14]. В данной работе мы будем иметь дело с молекулярными и кластерными пучками, генерируемыми при

*E-mail: gmakarov@isan.troitsk.ru

сверхзвуковом расширении газа на выходе из импульсного сопла.

Среди методов детектирования молекулярных и кластерных пучков наиболее распространенными являются масс-спектрометрический метод и метод детектирования с помощью охлаждаемых (обычно жидким гелием) болометров (см., например, [1–4, 11–14] и приведенные в них ссылки). Диагностику молекулярных и кластерных пучков можно проводить также [1–4, 15–17] с помощью методов, основанных на индуцированной лазерным излучением флуоресценции (LIF) или индуцированной электронным пучком флуоресценции (EBIF). Существует много других методов диагностики молекулярных и кластерных пучков, в том числе основанных на возбуждении молекул и кластеров лазерным излучением [1–4, 11, 15–18].

В работе [18] нами был предложен метод детектирования кинетической и внутренней энергии молекул в пучках и струях с помощью неохлаждаемого пироэлектрического приемника (ПЭП) и импульсного CO_2 -лазера. Этот метод успешно использовался нами для исследования многофотонного возбуждения молекул интенсивным ИК лазерным излучением в газодинамически охлажденных молекулярных пучках, струях и потоках [19–21], а также для изучения параметров импульсных молекулярных пучков, характеризующихся разной кинетической энергией [22–27]. В данной работе показано, что с помощью пироэлектрического приемника, имеющего хорошее временное разрешение (около 3–5 мкс), можно наблюдать и исследовать кластеризацию газа в струе, а также определять порог кластеризации в зависимости от давления газа над соплом. Однако чтобы лучше понять возможности ПЭП для указанной цели, рассмотрим вначале кратко его устройство, основные принципы детектирования с помощью него кинетической и внутренней энергии молекул в пучках, а также особенности детектирования с помощью ПЭП молекулярных пучков, характеризующихся низкой кинетической энергией. Именно указанные принципы и особенности лежат в основе наблюдения и исследования с помощью ПЭП процесса кластеризации атомов и молекул в газодинамически охлажденных пучках и струях.

2. УСТРОЙСТВО ПИРОЭЛЕКТРИЧЕСКОГО ПРИЕМНИКА

Используемый нами пироэлектрический приемник подробно описан в работе [28]. ПЭП состоит из

подложки из стекла (или рубина) размером примерно $10 \times 10 \text{ мм}^2$ (толщиной 2–3 мм), на которую последовательно нанесены путем напыления нижний электрод, пироактивная пленка и верхний электрод. Пироактивным элементом является тонкая поликристаллическая пленка, представляющая собой конгломерат из мелких пространственно-ориентированных кристалликов из полициклического органического соединения. Электроды нанесены в виде двух взаимно перпендикулярных полосок из алюминия шириной около 4 мм. Толщина электродов и пироактивного слоя меньше или равна 1 мкм. Размеры активного элемента ПЭП равны $4 \times 4 \text{ мм}^2$. Внутреннее сопротивление пироприемника составляет около 1 ГОм, емкость — порядка 100 пф. ПЭП такой конструкции имеет минимальные акустические шумы. Другим важным его преимуществом является довольно хорошее временное разрешение, т.е. быстрое остывание ПЭП после мгновенного импульсного нагрева ($\tau_T \approx 3\text{--}5 \text{ мкс}$). Время τ_T определяется теплоемкостью пироэлемента и скоростью передачи тепла от него на массивную подложку. Пироэлектрический приемник с таким временным разрешением позволяет получать времяпролетные спектры молекул в импульсном пучке (или струе), и тем самым измерять их кинетическую энергию и поступательную температуру [18, 19].

3. ОСНОВЫ ДЕТЕКТИРОВАНИЯ ИМПУЛЬСНЫХ МОЛЕКУЛЯРНЫХ ПУЧКОВ С ПОМОЩЬЮ ПИРОЭЛЕКТРИЧЕСКОГО ПРИЕМНИКА

Метод детектирования молекулярных пучков с помощью ПЭП основан [18, 19] на измерении энергии молекул, сталкивающихся с поверхностью активного элемента приемника, где эта энергия преобразуется в тепло, в результате чего индуцируется сигнал. Индуцированный молекулами пучка сигнал с ПЭП предварительно усиливался ($\times 100$) и подавался на осциллограф. Эксперименты проводились как со сформированным с помощью скиммера молекулярным пучком, так и без формирования пучка. В обоих случаях детектором измерялась энергия молекул, распространяющихся внутри телесного угла, определяемого размерами активного элемента ПЭП ($4 \times 4 \text{ мм}^2$) и расстоянием от сопла до приемника. Это расстояние могло изменяться путем перемещения ПЭП вдоль оси пучка с помощью механического устройства. Это позволяло нам измерять времяпролетные спектры молекул в пучке на различных расстояниях от сопла. Из них определялось распре-

деление кинетической энергии молекул в пучке. В случае возбуждения молекул лазерным излучением измерялась также их внутренняя энергия.

В отсутствие возбуждающего лазерного импульса сигнал S_0 с детектора пропорционален следующей величине:

$$S_0 \propto nv(E_a + E + mv^2/2) \propto nvE_0, \quad (1)$$

где n — плотность числа молекул на поверхности детектора, v и m — соответственно скорость и масса молекулы, E — энергия молекулы (сумма колебательной, вращательной и «локальной» поступательной энергии), E_a — теплота адсорбции на молекулу, E_0 — суммарная энергия, приведенная в скобках. При колебательном возбуждении молекул лазерным импульсом сигнал

$$S_L \propto nv(E_0 + E_{ab}), \quad (2)$$

где E_{ab} — энергия, поглощенная молекулой из лазерного импульса. Таким образом, добавочный по сравнению с невозбужденными молекулами сигнал, индуцированный на приемнике, является мерой поглощенной молекулами пучка энергии из лазерного импульса при их колебательном возбуждении [18, 19].

Из анализа экспериментально наблюдаемых времяпролетных распределений «холодных» и колебательно-возбужденных молекул можно определить поступательную, вращательную и колебательную температуру молекул в пучке [18, 19]. При анализе времяпролетных спектров использовалось стандартное (с двумя параметрами) выражение для распределения плотности числа молекул по скоростям в сверхзвуковом молекулярном пучке [29, 30]:

$$n(v) \sim \left(\frac{v}{u}\right)^2 \exp\left[-\frac{(v-u)^2}{\alpha^2}\right], \quad (3)$$

где u — средняя скорость молекул в пучке, а $\alpha = (2k_B T/m)^{1/2}$ — наиболее вероятная скорость молекул в системе координат, связанной с пучком.

4. ОСОБЕННОСТИ ДЕТЕКТИРОВАНИЯ С ПОМОЩЬЮ ПЭП НИЗКОЭНЕРГЕТИЧЕСКИХ МОЛЕКУЛЯРНЫХ ПУЧКОВ

Кинетическая энергия молекул в пучках определяется [11] температурой газа T_0 до расширения через сопло:

$$E_{kin} = \frac{1}{2}mv^2 = \frac{\gamma}{\gamma-1}k_B(T_0 - T), \quad (4)$$

где v — установившаяся скорость молекул в потоке, $\gamma = c_p/c_v$ — отношение удельных теплоемкостей, k_B — постоянная Больцмана, T — установившаяся температура молекул в пучке. При комнатной температуре газа в источнике ($T_0 \approx 300$ К) кинетическая энергия молекул в пучке в зависимости от величины показателя γ составляет от 50–60 мэВ (для одноатомного газа) до ≥ 150 –200 мэВ (для газа многоатомных молекул). Из соотношения (4) следует, что за счет нагревания или охлаждения газа в источнике можно варьировать энергию молекул в пучке.

При работе с низкоэнергетическими молекулярными пучками проявляются особенности их детектирования с помощью неохлаждаемого пироэлектрического приемника: отсутствие сигнала с приемника или генерация сигнала отрицательной полярности. Эти особенности обусловлены следующими тремя причинами: 1) пироэлектрический приемник является измерителем энергии; 2) поверхность приемника находится при комнатной, а не при низкой температуре, как в случае с болометром, 3) в основе детектирования молекул лежит обмен энергией между падающими на детектор молекулами и поверхностью детектора. Вследствие этого при падении на детектор высокоэнергетических молекулярных пучков происходит передача энергии от молекул к поверхности детектора, а при падении низкоэнергетических молекулярных пучков — отбор энергии молекулами от поверхности детектора. В связи с этим, в зависимости от энергии молекул в пучке индуцированный на приемнике сигнал может иметь как положительную, так и отрицательную полярность, или равняться нулю.

Рассмотрим, например, случай с молекулярными пучками благородных газов. При комнатной температуре ПЭП атомы не захватываются поверхностью. Следовательно, в соотношении (1) энергию адсорбции, а также внутреннюю энергию частиц можно приравнять нулю. Поэтому в пределе узкого скоростного распределения атомов в пучке (для монокроматического пучка) в эксперименте могут реализоваться следующие три случая:

$$E_{kin} = \frac{mv^2}{2} > k_B T_s, \quad (5)$$

$$E_{kin} = \frac{mv^2}{2} = k_B T_s, \quad (6)$$

$$E_{kin} = \frac{mv^2}{2} < k_B T_s. \quad (7)$$

Здесь $k_B T_s$ — энергия поверхности детектора. В случае выполнения соотношения (5) на детекторе бу-

дет индуцироваться положительный сигнал, в случае (6) — нулевой сигнал и в случае (7) — отрицательный сигнал.

Отметим важный фактор, который следует из соотношений (4) и (6). Индуцированный на детекторе сигнал равен нулю при температуре газа в источнике, которая удовлетворяет условию

$$T_0 = \frac{\gamma - 1}{\gamma} T_s + T. \quad (8)$$

Установившаяся температура T атомов в пучке обычно довольно низкая ($T \leq 5\text{--}10$ К). Поэтому в случае благородных газов ($\gamma \geq 1.66$ [31] при $T \approx 300$ К) нулевой сигнал на детекторе индуцируется при температуре в источнике $T_0 \approx 120\text{--}125$ К. В случае же многоатомных молекул, которые характеризуются малыми величинами показателя адиабаты γ (например, в случае SF_6 , $\gamma = 1.1$ [31]), нулевой сигнал и отрицательный сигнал на детекторе формировались бы лишь при очень низкой температуре газа в источнике (при $T_0 \leq 30\text{--}50$ К в случае SF_6). Однако при низкой температуре многие молекулярные газы конденсируются, поэтому получение молекулярных пучков за счет газодинамического расширения становится невозможным. В некоторых случаях источники молекулярных пучков охлаждаются примерно до температуры жидкого азота ($T_0 \approx 77$ К). При указанной температуре молекулярные пучки благородных газов, а также неконденсирующихся при такой температуре газов некоторых двухатомных молекул (например, H_2 , O_2 , CO , NO), показатель адиабаты которых при указанной температуре $\gamma \geq 1.4$ [31], будут индуцировать на ПЭП отрицательный сигнал. Охлажденные до указанной температуры молекулы CH_4 ($\gamma \geq 1.41$ при $T \leq 158$ К [31]) также индуцируют на ПЭП отрицательный сигнал.

5. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ УСТАНОВКА И МЕТОД

Экспериментальная установка, которая использовалась в данных экспериментах, подробно описана в работах [26, 27]. Поэтому здесь мы рассмотрим ее лишь кратко. Схема установки приведена на рис. 1. Основные элементы установки — вакуумная камера, в которой формируется молекулярный пучок, источник импульсного молекулярного пучка и детектор пучка — пироэлектрический приемник. Кроме этого, установка включала также охлаждаемые жидким азотом хладопровод и многоканальную пластинку (МКП), прикрепленную к хладопроводу. Система,

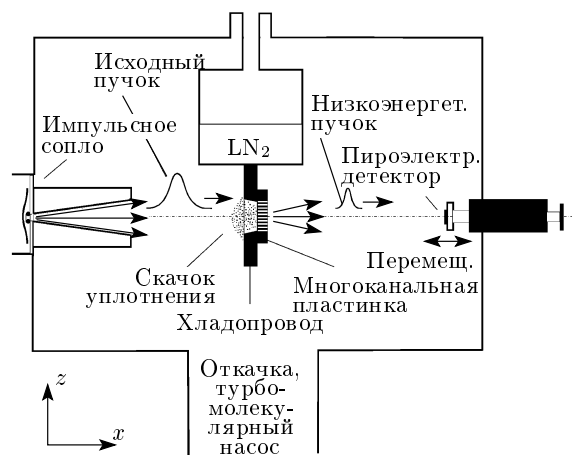


Рис. 1. Схема экспериментальной установки

состоящая из хладопровода и МКП, могла устанавливаться на пути основного молекулярного пучка и служила для получения интенсивных вторичных импульсных молекулярных пучков, характеризующихся разной кинетической энергией (см. ниже этот раздел).

Для получения молекулярного (кластерного) пучка в экспериментах использовалось импульсное сопло типа токовая петля [32]. Диаметр отверстия равен 0.75 мм. Время открывания в зависимости от состава и давления газа над соплом (а также от величины подаваемого на сопло для его открывания импульсного напряжения U_n) составляло $\approx 50\text{--}100$ мкс (по полувысоте). Давление газа над соплом изменялось примерно от 0.1 до 7 атм. Сопло имело форму конуса (полный угол раствора 15° , длина конуса 35 мм). Вакуумная камера, в которой формировался молекулярный пучок, откачивалась до давления приблизительно $1 \cdot 10^{-6}$ Торр турбомолекулярным насосом. Число N_{fl} молекул, выходящих из сопла за один импульс, зависело от состава и давления газа над соплом (а также от величины U_n) и в данных экспериментах изменялось примерно от $4 \cdot 10^{15}$ до $2 \cdot 10^{18}$ атомов/импульс в случае гелия. В случае других газов N_{fl} было в 2–5 раз меньше. Метод измерения числа молекул в импульсе подробно описан в работах [20, 33, 34]. В случае инертных газов измерение N_{fl} проводилось с помощью ионизационной лампы ПМИ-10. Абсолютная калибровка лампы проводилась на основе измерений расхода газа из газовой системы за n импульсов сопла. Объем системы, а также давление газа в ней были известны.

Чтобы продемонстрировать наблюдение сигналов разной полярности, нами были выполнены эксперименты по детектированию с помощью ПЭП интенсивных импульсных молекулярных пучков He и CN_4 , имеющих различную кинетическую энергию. Молекулярные пучки, характеризующиеся разными величинами кинетической энергии, нами были получены за счет формирования скачка уплотнения [35–37] перед твердой поверхностью [38–40] при взаимодействии с ней интенсивного импульсного сверхзвукового газодинамически охлажденного молекулярного пучка (или потока). Известно, что импульсные источники молекулярных пучков нельзя охлаждать до низких температур ($T \leq 200$ К), поскольку используемые в них материалы (эластомеры и пластики) теряют свои упругие и пластические свойства при низкой температуре. В то же время газ в скачке уплотнения легко можно охлаждать, а также нагревать (в том числе лазерным излучением). Поэтому указанный метод позволяет получать молекулярные пучки разной кинетической энергии.

Суть метода поясняет рис. 1. Интенсивный ($\geq 10^{21}$ молекул/ср·с) широкоапертурный (расходимость $\omega \approx 0.05$ ср) импульсный молекулярный пучок падал на охлаждаемые жидким азотом медный хладопровод и прикрепленную к нему МКП. Толщина пластинки составляла $L = 4$ мм, диаметр каналов в ней — $d_0 = 0.5$ мм. Расстояние от среза сопла до поверхности многоканальной пластинки было равно 70 мм. Чтобы исключить возможность работы пластинки в «прозрачном» режиме, она поворачивалась на небольшой угол $\alpha \approx d_0/L \approx 7^\circ$ по отношению к оси падающего пучка.

При взаимодействии интенсивного сверхзвукового молекулярного пучка с МКП перед ней, а также в каналах МКП формировался скачок уплотнения [38–40], характерные размеры которого были порядка средней длины свободного пробега молекул, Λ [35, 36]. Хладопровод и МКП могли также нагреваться до температуры примерно 450 К с помощью электрического нагревателя. Контроль температуры МКП проводился с помощью термомпары. В условиях, когда $\Lambda_{eff} \geq d_0$ (Λ_{eff} — эффективная средняя длина свободного пробега молекул в каналах, $\Lambda_{eff} > \Lambda$ [14]), газ в каналах успевал охлаждаться либо нагреваться до температуры стенок, в результате чего из скачка уплотнения генерировался пучок низкоэнергетических [25–27] или высокоэнергетических [41–43] молекул.

В экспериментах измерялись времяпролетные спектры исследуемых атомов и молекул в пучке на различных расстояниях от сопла. Из этих спектров

определялись скорости частиц в пучке. При исследовании кластеризации атомов и молекул нами измерялись также зависимости амплитуды пироэлектрического сигнала и скорости частиц в пучке от давления газа в источнике. Кроме этого, измерялось число атомов (молекул) N_{fl} , выходящих из сопла за импульс.

Как следует из соотношения (1), индуцированный на приемнике сигнал пропорционален числу частиц в пучке и растет с увеличением давления газа над соплом. Однако с началом формирования кластеров темп роста амплитуды сигнала замедляется. Это связано с тем, что при столкновении с поверхностью детектора кластеры диссоциируют. Энергия, необходимая для их диссоциации (испарения), отнимается от поверхности детектора. Кроме того, по мере формирования кластеров уменьшается скорость частиц в пучке [44], что приводит к уменьшению энергии падающего пучка. В результате, при высокой степени кластеризации пучка может наблюдаться даже изменение полярности сигнала (см. разд. 6). Следовательно, на основе эволюции сигнала с детектора, а также результатов измерений зависимости амплитуды сигнала и скорости частиц в пучке от давления газа над соплом можно судить о начале кластеризации атомов и молекул в струе.

6. РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

На рис. 2 показана эволюция сигнала, индуцированного на ПЭП вторичным молекулярным пучком He по мере понижения температуры газа в источнике пучка (в скачке уплотнения) от $T_0 \approx 295$ К до $T_0 \approx 80$ К. Видно, что при уменьшении температуры полярность индуцированного на ПЭП сигнала меняется: положительный сигнал становится отрицательным. При температуре МКП около 120 К индуцированный на приемнике сигнал практически равен нулю для атомов, скорости которых удовлетворяют соотношению (6). Атомы высокоэнергетического крыла скоростного распределения атомов в пучке индуцируют положительный сигнал, а низкоэнергетического крыла — отрицательный. В случае очень узкого скоростного распределения частиц в пучке сигнал при определенной скорости (при определенной температуре газа в источнике пучка) может практически равняться нулю.

На рис. 3 показаны сигналы, индуцированные на ПЭП кластерными пучками Xe и CO_2 при давлении газа над соплом 3 атм. При указанном давлении вероятность кластеризации этих газов очень высока

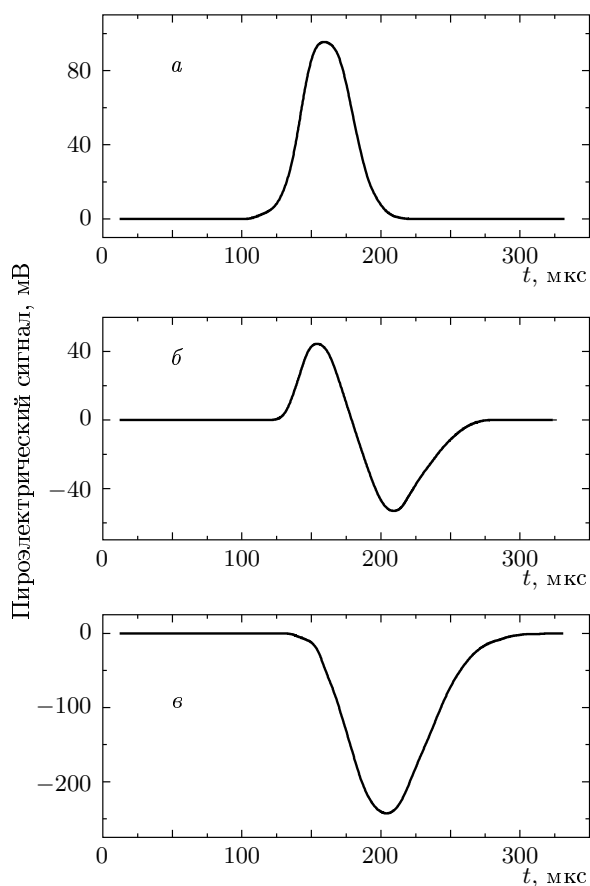


Рис. 2. Эволюция сигнала с детектора по мере уменьшения температуры T_0 газа (He) в источнике вторичного молекулярного пучка (в скачке уплотнения): $T_0 \approx 295$ (а), 120 (б), 80 (в) К

(см. ниже этот раздел). Видно, что сигналы имеют в основном отрицательную полярность. Однако в отличие от результатов, представленных на рис. 2, в данном случае основной причиной генерации отрицательного сигнала является не низкая энергия частиц в пучке, а передача энергии от поверхности детектора кластерам на их диссоциацию при контакте с поверхностью.

Отметим, что кластеризация атомов и молекул при газодинамическом расширении газа на выходе из сопла довольно хорошо изучена (см., например, [1, 4, 5]). Вероятность образования кластеров в сопловых источниках определяется «параметром Хагены» [45, 46], который дается выражением

$$\Gamma^* = k \frac{(d/\text{tg } \alpha)^{0.85} p_0}{T_0^{2.29}}, \quad (9)$$

где d — диаметр отверстия сопла (в микронах), α — угол, равный половине угла конуса расходящейся ча-

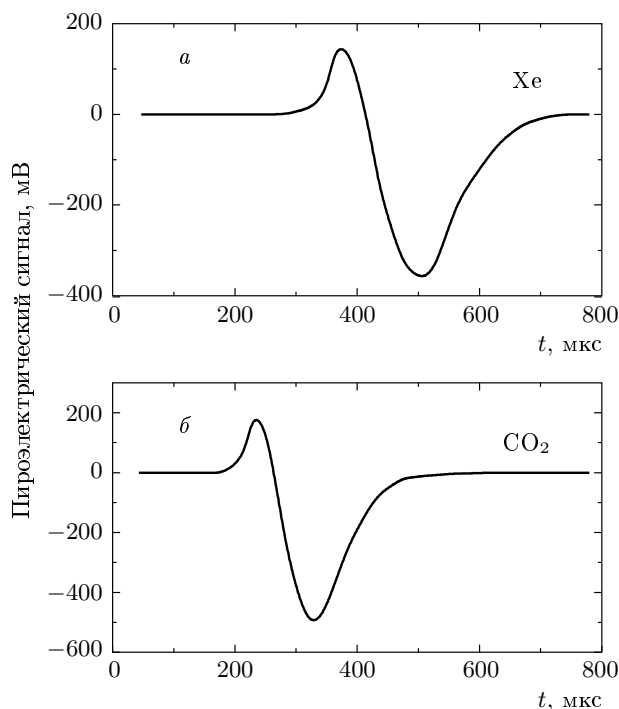


Рис. 3. Сигналы с детектора, индуцированные молекулярными пучками Xe (а), CO_2 (б). Давление газа над соплом в обоих случаях равно 3 атм. Амплитуда подаваемого на сопло напряжения составляет $U_n = 3.4$ кВ. Расстояние от сопла до детектора — 143 мм

сти сопла, p_0 — давление над соплом (в миллибарах), T_0 — температура газа до расширения, k — константа, которая зависит от типа газа ($k \approx 5500$ для Xe, 2900 для Kr, 1700 для Ar, 180 для Ne, 4 для He [47]). Результаты исследований показывают, что эффективная кластеризация газа начинается тогда, когда параметр Γ^* начинает превышать величину 300.

Наиболее трудно конденсируемым газом является гелий. Вместе с тем, кластеры гелия привлекают большое внимание исследователей. Это связано, главным образом, с возможностью исследования спектров молекул и кластеров внутри капелек гелия и изучения атомарно-молекулярных процессов в условиях очень низкой температуры ($T \leq 0.4$ К), которые имеют место внутри или на поверхности нанокапелек (кластеров) сверхтекучего гелия [48–51]. Как следует из соотношения (9), вероятность формирования кластеров растет с увеличением давления и уменьшением температуры газа в источнике. Поэтому при получении кластеров в сопловых источниках, работающих в непрерывном режиме, обыч-

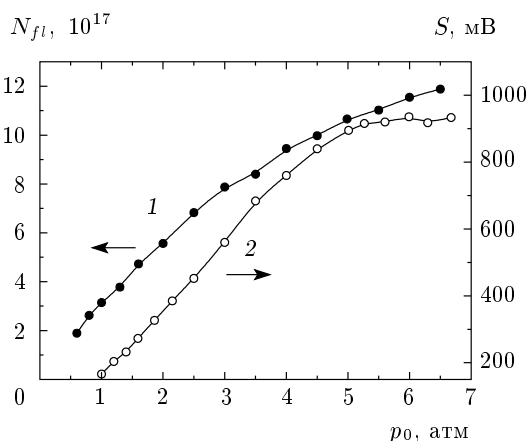


Рис. 4. Зависимости числа атомов гелия, выходящих из сопла за один импульс (кривая 1), и амплитуды пьезоэлектрического сигнала S (кривая 2) от давления гелия над соплом. Расстояние от сопла до детектора 173 мм, $U_n = 3.4$ кВ

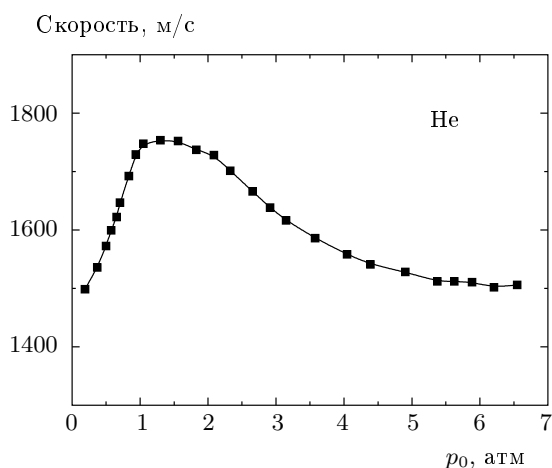


Рис. 5. Зависимость скорости частиц в пучке от давления гелия над соплом, $U_n = 3.4$ кВ

но используются довольно высокие давления и низкие температуры газа в источнике ($p_0 \approx 1-6$ атм, $T_0 \leq 200$ К) [44, 50]. В описываемых нами экспериментах газ над соплом находился при комнатной температуре ($T_0 \approx 295$ К). Однако использование сравнительно высоких давлений (до 7 атм) и конусного сопла с малым углом раствора конуса ($\alpha = 7^\circ$) позволило нам наблюдать формирование кластеров многих газов (Ar, Kr, Xe, H_2 , D_2 , CO_2 , CH_4), в том числе гелия.

На рис. 4 приведены зависимости числа атомов гелия N_{fl} , выходящих из сопла за импульс, и амплитуды пьезоэлектрического сигнала S от давления

газа над соплом. Видно, что N_{fl} растет с увеличением давления вплоть до 7 атм, не достигая значения насыщения. Другое поведение имеет зависимость индуцированного на ПЭП сигнала от давления газа в источнике. При $p_0 \geq 4$ атм наблюдается насыщение сигнала, что связано с эффективной кластеризацией гелия в струе. Это подтверждается также результатами измерений зависимости скорости частиц от давления газа над соплом, которые приведены на рис. 5. В области малых давлений ($p_0 \leq 1$ атм) имеет место увеличение скорости частиц с увеличением давления. Это связано с трансформацией все большей доли тепловой энергии атомов в направленное движение по мере увеличения числа столкновений при расширении. В области давлений ($p_0 \approx 1-1.5$ атм) достигается максимальная скорость частиц в пучке, после чего наблюдается уменьшение их скорости с увеличением давления гелия над соплом. Средняя скорость частиц уменьшается примерно от 1750 м/с при $p_0 \approx 1-1.5$ атм до 1500 м/с при $p_0 \geq 6$ атм. Это связано с формированием кластеров в струе [44, 50]. Пороговое давление, при котором начинается формирование кластеров, составляет $p_{0,th} \geq 1.5$ атм.

Исследования с другими газами также показали, что кластеризация частиц в струе заметно влияет на характер зависимости амплитуды пьезоэлектрического сигнала от давления газа над соплом. Результаты представлены на рис. 6. Заметим, что приведенные на рис. 6 результаты получены при $U_n = 3.2$ кВ. Число частиц, выходящих из сопла за импульс, при этом было примерно в два раза меньше, чем при $U_n = 3.4$ кВ. Видно, что в случае трудно конденсируемых газов (He, H_2) пьезоэлектрический сигнал значительно быстрее растет с увеличением давления, чем в случае легко конденсируемых газов (Kr, Xe, CO_2). Так, в случае Xe и CO_2 уже при давлениях газа над соплом $p_0 \leq 0.5$ атм пьезоэлектрический сигнал имеет тенденцию к насыщению, в то время как, например, в случае He и H_2 такая тенденция наблюдается лишь при довольно высоком давлении ($p_0 \geq 4-5$ атм). Формирование кластеров ксенона наблюдалось нами при давлении $p_0 \leq 0.15$ атм, а кластеров CO_2 — при $p_0 \leq 0.2$ атм. Промежуточное положение занимают Ag и CH_4 . На рис. 7 приведены зависимости скорости частиц в пучке от давления газа над соплом для He, CH_4 и Kr. Видно, что после достижения максимального значения скорость частиц в пучке начинает уменьшаться, что связано с формированием и ростом кластеров в струе по мере увеличения давления газа над соплом.

Следует отметить, что даже в случае эффектив-

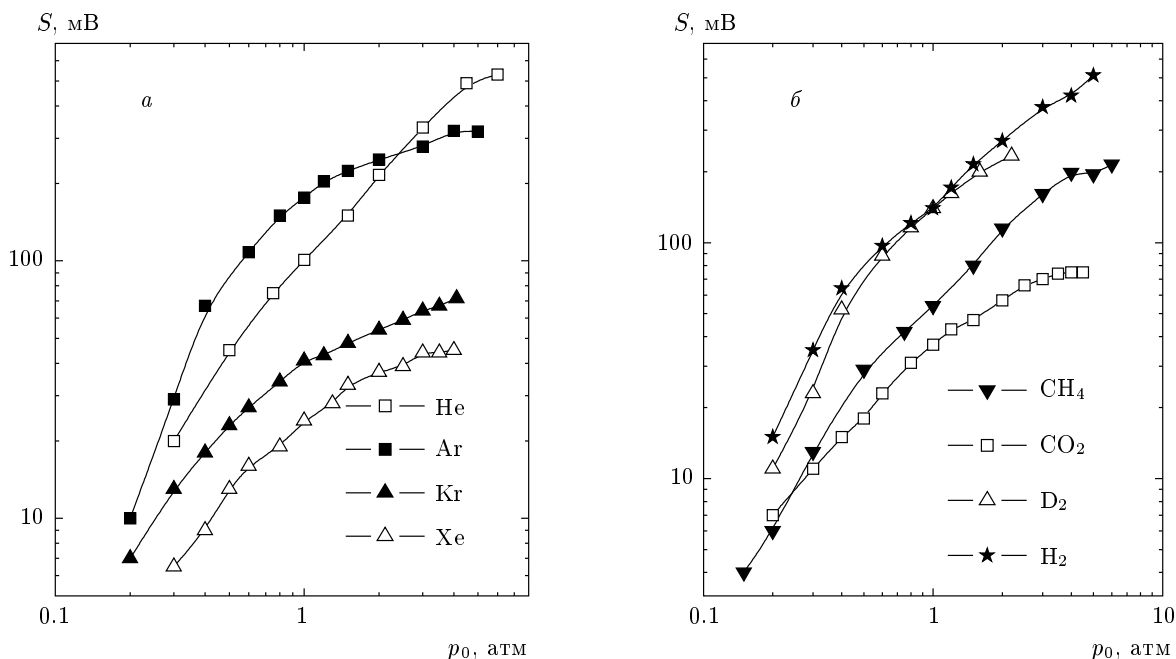


Рис. 6. Зависимости амплитуды пироэлектрического сигнала S от давления газа над соплом для ряда атомарных (а) и молекулярных (б) газов. Расстояние от сопла до детектора 173 мм, $U_n = 3.2$ кВ

Таблица 1. Измеренные кинетические энергии кластеров в импульсном пучке в расчете на одну частицу, энергии связи (диссоциации) кластеров [52] и показатель адиабаты для газов [31]

Параметр	He	Ar	Kr	Xe	H ₂	D ₂	CH ₄	CO ₂
E_{kin} , мэВ	≤ 60	≤ 60	≤ 60	≤ 60	≤ 90	≤ 90	≤ 110	≤ 110
ε_b , мэВ	$\leq 10^{-3}$	12.3	17.3	24.4			85	
γ ($T \approx 300$ К)	1.66	1.67	1.67	1.7	1.4	1.4	1.31	1.3

ной кластеризации частиц в струе отрицательный сигнал на ПЭП индуцируется не всегда. Полярность наведенного на детекторе сигнала зависит от соотношения между полной энергией (кинетической плюс внутренней) и энергией диссоциации кластера в расчете на одну частицу. Если полная энергия падающего на детектор кластера значительно больше энергии E_D , которая расходуется на диссоциацию (фрагментацию) кластера при столкновении с поверхностью детектора, так что выполняется условие

$$(E_{kin} + E) - E_D > k_B T_s, \tag{10}$$

то на детекторе будет индуцироваться положительный сигнал. Если же выполняется условие

$$(E_{kin} + E) - E_D < k_B T_s, \tag{11}$$

то индуцируется отрицательный сигнал. Таким об-

разом, чем больше энергия связи частиц в кластере (например, Kr, Xe), тем больше вероятность того, что ПЭП будет индуцировать отрицательный сигнал. В случае же, если энергии связи частиц в кластере (или теплота парообразования) существенно меньше их кинетической энергии (например, He, Ar) (см. табл. 1), вероятность формирования отрицательного сигнала мала. Уменьшение сигнала будет наблюдаться лишь при эффективной кластеризации, главным образом, из-за уменьшения скорости частиц в пучке, а отрицательный сигнал на ПЭП будет индуцироваться только в случае детектирования низкоэнергетических кластерных (или молекулярных) пучков, когда заведомо выполняется условие (11). Отметим здесь, что именно поэтому отрицательный сигнал на ПЭП в первую очередь индуцируют частицы, принадлежащие низкоэнергетиче-

Таблица 2. Пороговые значения давления газа над соплом ($p_{0,th}$), при которых начинается кластеризация частиц в струе, и параметр Хагены (Γ^*) при давлении над соплом $p_0 = 1$ атм

Параметр	He	Ar	Kr	Xe	H ₂	D ₂	CH ₄	CO ₂
$p_{0,th}$, атм	≥ 1.5	≤ 0.75	≤ 0.4	≤ 0.15	≥ 1.0	≈ 1.0	≈ 1.0	≤ 0.2
Γ^* (1 атм)	≈ 15	6200	10575	21520				

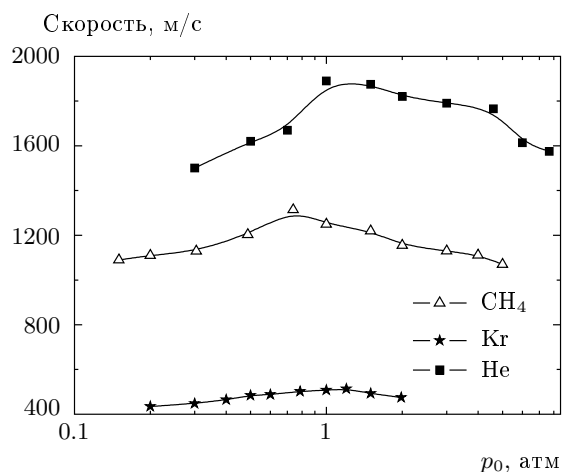


Рис. 7. Зависимости скоростей частиц в пучке от давления газа над соплом в случае He, CH₄ и Kr, $U_n = 3.2$ кВ

скому крылу скоростного распределения частиц в пучке (см. рис. 2, 3).

Из анализа полученных нами данных мы определили пороговые значения давлений, при которых наблюдается кластеризация газов в струе. Результаты представлены в табл. 2. В таблице приведены также значения параметра Хагены, вычисленные на основе соотношения (9), для некоторых используемых нами газов при давлении над соплом $p_0 = 1$ атм. Отметим, однако, что динамика расширения газа из импульсных сопел может существенно отличаться от динамики расширения из непрерывных источников, для которых получено соотношение (9). На динамику расширения газа и формирование кластеров сильно влияет также геометрия сопла, особенно длина канала в узкой части сопла [1, 4]. В используемом нами сопле длина канала составляла около 1.5 мм. Поэтому возможно, что в наших экспериментах кластеризация газов при используемых давлениях происходила более эффективно, чем это имеет место при расширении газа на выходе из непрерывного сопла с таким же критическим диаметром отверстия, но малой длиной канала.

Следует отметить, что применяемый нами метод и полученные результаты не позволяют определить средний размер кластеров, которые формировались в наших экспериментах. Однако в случае благородных газов размер кластеров можно грубо оценить исходя из реализуемых в экспериментах значений параметра Хагены Γ^* (табл. 2) и существующих в литературе данных о результатах измерений зависимости среднего размера кластеров от этого параметра [46, 53, 54] (см. также работы [1, 4]). Так, из указанных результатов следует, что средний размер кластеров составляет $\bar{N} \approx 4-5$ при $\Gamma^* \approx 300$ и $\bar{N} \approx 300$ при $\Gamma^* \approx 1000$. Оценки показывают, что в наших экспериментах при давлениях газа над соплом $p_0 \geq 5$ атм средний размер кластеров в случае гелия, вероятно, находился в диапазоне $\bar{N} \leq 5-10$, в случае аргона — $\bar{N} \geq 10^2$, а в случае криптона и ксенона — $\bar{N} \geq 10^3$.

7. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В работе предложен метод исследования кластеризации атомов и молекул в импульсной газодинамической струе с помощью неохлаждаемого пироэлектрического приемника, имеющего временное разрешение 3–5 мкс. Изучены особенности детектирования молекулярных и кластерных пучков с помощью ПЭП. Исследована кластеризация ряда газов (He, Ar, Kr, Xe, H₂, D₂, CO₂, CH₄) при газодинамическом расширении на выходе из сопла. Определены пороговые значения давлений над соплом, при которых начинается кластеризация частиц в струе. Полученные результаты позволяют находить оптимальные условия для генерации интенсивных кластерных пучков.

Предложенный метод основан на измерении нескольких параметров — формы и полярности сигнала с детектора, зависимости амплитуды сигнала и числа молекул, выходящих из сопла за импульс, от давления — и их сопоставления между собой, а также на измерении скорости частиц в пучке. Можно полагать, что указанный метод позволяет

получать надежную информацию о кластеризации частиц в импульсной струе.

Рассмотренные особенности детектирования молекулярных пучков с помощью неохлаждаемого ПЭП следует учитывать при исследовании энергии молекул и кластеров в пучках. Именно учет указанных особенностей позволил нам изучить параметры молекулярных пучков, характеризующихся различной кинетической энергией [25–27], а также кластеризацию атомов (молекул) в струе.

Авторы выражают благодарность В. М. Апатину, В. Н. Лохману и Д. Д. Огурку за помощь. Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (гранты №№ 06-02-16634, 07-02-00165).

ЛИТЕРАТУРА

1. H. Pauly, *Atom, Molecule, and Cluster Beams II, Cluster Beams, Fast and Slow Beams, Accessory Equipment and Applications*, Springer, New York (2000).
2. *Atomic and Molecular Beam Methods*, Vol. 1, ed. by G. Scoles, Oxford Univ. Press, New York (1988).
3. *Atomic and Molecular Beam Methods*, Vol. 2, ed. by G. Scoles, Oxford Univ. Press, New York (1992).
4. Г. Н. Макаров, УФН **176**, 121 (2006).
5. Б. М. Смирнов УФН **173**, 609 (2003).
6. Г. Н. Макаров, УФН **178**, 337 (2008).
7. W. A. de Heer, *Rev. Mod. Phys.* **65**, 611 (1993).
8. I. Yamada and N. Toyoda, *Nucl. Instr. Meth. B* **232**, 195 (2005).
9. W. Fahrner, *Nanotechnologie und Nanoprozesse*, Springer, Berlin (2003).
10. O. F. Hagena, in *Gasdynamics, Molecular Beams and Low Density Gasdynamics*, ed. by P. P. Wegener, Marcel Dekker, New York (1974), p. 93.
11. M. Kappes and S. Leutwyler, in *Atomic and Molecular Beam Methods*, Vol. 1, ed. by G. Scoles, Oxford Univ. Press, New York (1988), p. 380.
12. *Clusters of Atoms and Molecules*, Vol. 1, ed. by H. Haberland, Springer-Verlag, Heidelberg (1994).
13. M. L. Mandrich, W. D. Reents, Jr, and V. E. Bondebey, in *Atomic and Molecular Clusters*, ed. by E. R. Bernstein, Elsevier, Amsterdam (1990), p. 69.
14. H. Pauly, in *Atomic and Molecular Beam Methods*, Vol. 1, ed. by G. Scoles, Oxford Univ. Press, New York (1988), p. 83.
15. D. Bassi, in *Atomic and Molecular Beam Methods*, Vol. 1, ed. by G. Scoles, Oxford Univ. Press, New York (1988), pp. 153, 168, 180.
16. M. Zen, in *Atomic and Molecular Beam Methods*, Vol. 1, ed. by G. Scoles, Oxford Univ. Press, New York (1988), p. 254.
17. U. Hefter and K. Bergmann, in *Atomic and Molecular Beam Methods*, Vol. 1, ed. by G. Scoles, Oxford Univ. Press, New York (1988), p. 193.
18. V. M. Apatin, L. M. Dorozhkin, G. N. Makarov, and G. M. Pleshkov, *Appl. Phys. B* **29**, 273 (1982).
19. В. М. Апатин, Г. Н. Макаров, ЖЭТФ **84**, 15 (1983).
20. Г. Н. Макаров, УФН **173**, 913 (2003).
21. Г. Н. Макаров, УФН **175**, 41 (2005).
22. В. М. Апатин, Г. Н. Макаров, В. В. Нестеров, Письма в ЖЭТФ **73**, 735 (2001).
23. V. M. Apatin, G. N. Makarov, and V. V. Nesterov, *Chem. Phys. Lett.* **347**, 101 (2001).
24. Г. Н. Макаров, ЖЭТФ **120**, 1411 (2001).
25. Г. Н. Макаров, Письма в ЖЭТФ **75**, 159 (2002).
26. G. N. Makarov, *Chem. Phys. Lett.* **366**, 490 (2002).
27. Г. Н. Макаров, ЖЭТФ **123**, 276 (2003).
28. R. V. Ambartzumian, L. M. Dorozhkin, G. N. Makarov, A. A. Puzosky, and B. A. Chajanov, *Appl. Phys.* **22**, 409 (1980).
29. R. G. Gallagher and J. B. Fenn, *J. Chem. Phys.* **60**, 3487 (1974).
30. J. B. Anderson, in *Gasdynamics, Molecular Beams and Low Density Gasdynamics*, ed. by P. P. Wegener, Marcel Dekker, New York (1974), p. 1.
31. *CRC Handbook of Chemistry and Physics*, 74th Edition, Editor in Chief D. R. Lide, CRC Press, Boca Raton (1993–1994).
32. W. R. Gentry and C. F. Giese, *Rev. Sci. Instr.* **49**, 595 (1978).
33. Г. Н. Макаров, А. Н. Петин, ЖЭТФ **119**, 5 (2001).
34. Г. Н. Макаров, В. Н. Лохман, Д. Е. Малиновский, Д. Д. Огурок, КЭ **25**, 545 (1998).
35. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Гидродинамика*, Наука, Москва (1986).

36. Я. Б. Зельдович, Ю. П. Райзер, *Физика ударных волн и высокотемпературных гидродинамических явлений*, Наука, Москва (1966).
37. Г. Н. Абрамович, *Прикладная газовая динамика*, Наука, Москва (1991), ч. 1.
38. Г. Н. Макаров, А. Н. Петин, КЭ **30**, 738 (2000).
39. Г. Н. Макаров, А. Н. Петин, Письма в ЖЭТФ **71**, 583 (2000).
40. G. N. Makarov and A. N. Petin, Chem. Phys. Lett. **323**, 345 (2000).
41. Г. Н. Макаров, ЖТФ **72**(12), 9 (2002).
42. Г. Н. Макаров, Химия высоких энергий **38**, 50 (2004).
43. G. N. Makarov, Chem. Phys. **290**, 137 (2003).
44. J. A. Northby, J. Chem. Phys. **115**, 10065 (2001).
45. O. F. Hagen and W. Obert, J. Chem. Phys. **56**, 1793 (1972).
46. O. F. Hagen, Z. Phys. D **4**, 291 (1987).
47. J. Wormer, V. Guzielski, J. Stapelfeld, and T. Moller, Chem. Phys. Lett. **159**, 321 (1989).
48. J. P. Toennies, A. F. Vilesov, and K. B. Whaley, Phys. Today **54**(2), 31 (2001).
49. E. Lugovoj et al., in *Atomic and Molecular Beams, The State of the Art 2000*, ed. by R. Compargue, Springer, Berlin (2001), p. 755.
50. Г. Н. Макаров, УФН **174**, 225 (2004).
51. Г. Н. Макаров, УФН **176**, 1155 (2006).
52. Б. М. Смирнов, УФН **171**, 1291 (2001).
53. R. Karnbach et al., Rev. Sci. Instr. **64**, 2838 (1993).
54. U. Buck and R. Krohne, J. Chem. Phys. **105**, 5408 (1996).