

ИСТОЧНИК ПРИМЕСНОГО СВЕРХЗВУКОВОГО ПУЧКА МОЛЕКУЛ
ЩЕЛОЧНО-ГАЛОИДНЫХ СОЛЕЙ© 2020 г. В. М. Азриель^а, В. М. Акимов^{а,*}, Е. В. Ермолова^а, Д. Б. Кабанов^а,
Л. И. Колесникова^а, Л. Ю. Русин^а, М. Б. Севрюк^а^а Институт энергетических проблем химической физики им. В.Л. Тальрозе
Федерального исследовательского центра химической физики им. Н.Н. Семёнова РАН
Россия, 119334, Москва, Ленинский просп., 38, корп. 2

*e-mail: rusin@chph.ras.ru

Поступила в редакцию 15.05.2020 г.

После доработки 05.06.2020 г.

Принята к публикации 10.06.2020 г.

Описана конструкция источника примесного сверхзвукового пучка щелочно-галоидных молекул или других испаряемых твердых веществ. При давлении торможения газа-носителя (водорода или гелия) 0.5–5 атм, температуре торможения 1000 К и парциальном давлении примеси 10^{-2} Торр интенсивность пучка соли составила 10^{14} ср $^{-1} \cdot$ с $^{-1}$ и энергия молекул в пучке изменялась от 5.5 до 7.5 эВ для смеси с гелием и от 7.5 до 15.5 эВ для смеси с водородом. Модульная конструкция источника позволяет обеспечить легкую замену его функциональных узлов.

DOI: 10.31857/S0032816220060026

ВВЕДЕНИЕ

Практика использования молекулярных пучков в научных исследованиях и технике показывает, что успех работы сильно зависит от качества применяемых методов генерирования пучков и детектирования результатов их взаимодействия. Примесные сверхзвуковые молекулярные пучки нейтральных частиц — атомов, молекул, кластеров — широко используются для изучения упругого, неупругого и реакционного рассеяния атомов и молекул, процессов релаксации в струях, определения поверхности потенциальной энергии, исследования рассеяния атомов и молекул на твердых поверхностях и во многих других экспериментах, а также технологических процессах.

Широкое применение эти пучки нашли благодаря значительному диапазону реализуемых энергий (от единиц до десятков электронвольт) для тяжелых атомов и молекул, а также узкому распределению частиц пучка по скоростям. Такие характеристики достигаются при газодинамическом ускорении при истечении из зоны высокого давления в вакуум из сопла (с диаметром больше длины свободного пробега в зоне высокого давления) небольшой примеси тяжелой компоненты смеси в легком газе-носителе (как правило, молекулярном водороде или гелии) [1].

В предельном случае скорость тяжелой компоненты смеси возрастает до скорости газа-носителя

для с соответствующим увеличением энергии в M_h/M_l раз, согласно формуле

$$E = [\gamma k T / (\gamma - 1)] M_h / M_l,$$

где E — энергия молекулы тяжелой компоненты; $\gamma = c_p/c_v$ — отношение теплоемкостей газа-носителя ($\gamma = 7/5$ для водорода и $\gamma = 5/3$ для гелия); $k = 1.04 \cdot 10^{-19}$ Торр $\cdot$ см $^3 \cdot$ К $^{-1}$ — постоянная Больцмана; T — температура сопла; M_h и M_l — массы молекул тяжелой и легкой компоненты пучка соответственно.

Энергия пучка может изменяться за счет варьирования давления торможения, температуры и состава смеси. Пучок далее формируется скimmerом и коллиматором, которые расположены в дифференциально откачиваемых вакуумных камерах.

Примесные источники пучков конденсирующихся веществ, твердых при комнатной температуре, представляют собой, как правило, двухкамерные печи с отдельным нагревом газовой смеси испаряемого вещества и газа-носителя и сопла [2, 3].

В настоящей статье приводится описание оптимизированной конструкции источника примесного сверхзвукового пучка молекул галоидной соли щелочного металла. Прототип источника использовался для исследования процессов диссоциативной ионизации молекул солей, а так-

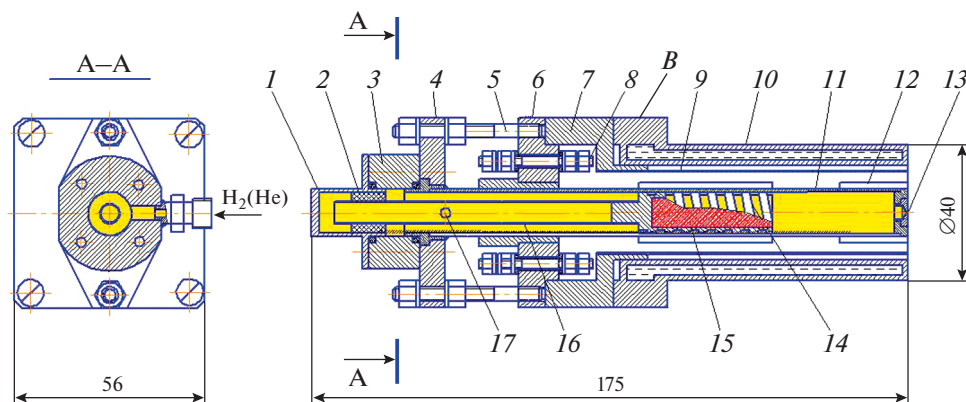


Рис. 1. Схема конструкции источника. 1 – задний фланец; 2 – фторопластовый держатель; 3 – переходная втулка; 4 – установочный фланец; 5 – шпилька; 6 – фланец; 7 – медный фланец; 8 – контактная шпилька; 9 – тепловой экран; 10 – рубашка водяного охлаждения; 11 – трубка камеры нагрева; 12 – керамическая трубка; 13 – сопло; 14 – контейнер; 15 – соль; 16 – танталовая трубка; 17 – отверстие для откачки.

же в экспериментах по взаимодействию пучка иодида калия с поверхностью алмаза [4, 5].

Особое внимание в конструкции источника уделено обеспечению возможности загрузки источника и замены соли, а также профилактики нагревателей и термопар с сохранением положения оси источника. Другое требование заключалось в том, чтобы обеспечить как можно более точную оптическую юстировку сопла, скиммера, коллиматора и других элементов, расположенных на оси пучка. Концепция легко удаляемого тигля использовалась ранее в конструкциях высокотемпературных источников пучков металлов [6].

КОНСТРУКЦИЯ ИСТОЧНИКА

На рис. 1 показана конструкция источника, который состоит из трех функциональных узлов в модульном исполнении: узла загрузки и замены соли, узла крепления и нагрева камеры источника и сопла, узла охлаждения.

Узел загрузки содержит цилиндрический контейнер 14 с солью 15. Контейнер выполнен из нержавеющей стали и имеет наружный диаметр 12 мм, внутренний – 8 мм, длину 40 мм, полезный объем 1.8 см³. Контейнер соединен с камерой нагрева тонкостенной танталовой трубкой 16 с размерами 6 × 0.12 мм, плотно вставленной в фторопластовый держатель 2 для фиксации положения контейнера. Трубка имеет дополнительное отверстие 17 для предварительной откачки внутренних полостей источника.

По наружной поверхности контейнера выполнена винтовая канавка шириной 2.5 мм, шагом 2.5 мм и глубиной 1 мм, по которой газ-носитель поступает в пространство “контейнер–сопло”. Зазор между наружной стенкой контейнера и внутренней стенкой трубки 11 камеры нагрева

выполнен минимальным для уменьшения диффузии пара соли в заднее пространство камеры.

Узел нагрева камеры источника и сопла включает в себя трубку из нержавеющей стали 11 с размерами 14 × 1 мм, два установочных фланца 4 и 6 и два нагревателя. В передний конец трубки вварена втулка с соплом 13. Сопло изготовлено с помощью лазера и представляет собой канал длиной 0.5 мм и диаметром 50 мкм. Задний конец трубки уплотнен резиновой прокладкой и через переходную втулку 3 соединен с линией подачи газа. При необходимости замены сопла, например вследствие увеличения его диаметра после длительной работы или неустранимой его закупорки, надо передвинуть задний фланец с трубкой на двух шпильках 5 вперед в новую позицию.

Нагреватели камеры источника и сопла выполнены из танталовой проволоки диаметром 0.5 мм, заключенной в керамические трубки 12, плотно уложенные вдоль камеры нагрева. Температура сопла и контейнера измеряется термопарами, приваренными к торцу сопла и к трубке 11. Концы нагревателей и термопар выведены через контактные шпильки 8, расположенные на фланце 6.

Узел охлаждения состоит из рубашки водяного охлаждения 10, теплового экрана 9, промежуточного медного фланца 7 и соединен по плоскости В с юстировочным столиком (на рис. 1 не показан), который обеспечивает необходимые перемещения источника относительно скиммера. Вводы движения выведены наружу камеры источника. При замене соли и нагревателей узел охлаждения и связанный с ним столик и верхний фланец источника не требуют демонтажа.

ПАРАМЕТРЫ ИСТОЧНИКА И ПУЧКА

Источник работал с примесными пучками молекул CsCl и KI. При практически равных моле-

кулярных массах этих солей и сходных температурных зависимостях давления пара энергия пучков и их интенсивности практически совпадали. Температура торможения составляла $T_0 = 1000$ К, диаметр сопла равен $d_0 = 50$ мкм. Энергия пучка варьировалась путем изменения давления торможения P_0 в интервале 0.5–5 атм, в качестве газ-носителя использовался гелий или водород. Мощность нагревателя сопла составляла 120 Вт, а нагревателя контейнера – 20 Вт. При этом температура контейнера была равна 820 К, что соответствовало давлению пара соли около 0.01 Торр. Максимальный расчетный поток газа из сопла определялся по формуле, приведенной в [7]:

$$N = f(\gamma)n_0\alpha_0\pi R_0^2 [\text{с}^{-1}],$$

где $f(\gamma) = 0.513$ для гелия и 0.484 для водорода; $n_0 = P_0/(kT_0)$ – концентрация газа в источнике; $\alpha_0 = (2kT_0/m)^{1/2}$; m – масса атома гелия или молекулы водорода; R_0 – радиус сопла.

Для водорода при $P_0 = 5$ атм максимальный расчетный поток из сопла составил 10^{20} с^{-1} . Этот поток скачивался двумя масляными бустерными насосами с производительностью по воздуху около 300 л/с при давлении 10^{-2} Торр, что соответствовало режиму работы источника типа Кампарга [8].

Интенсивность пучка соли I_s измерялась детектором с поверхностной ионизацией, расположенным на расстоянии 70 мм от сопла. При площади падения пучка на вольфрамовую нить детектора, равной $4.7 \cdot 10^{-3} \text{ см}^2$, ток положительных ионов на коллекторе детектора при $P_0 = 760$ Торр был равен 5.4 нА, что соответствует потоку $3.5 \cdot 10^{14} \text{ ср}^{-1} \cdot \text{с}^{-1}$.

Следует отметить, что эта величина, возможно, несколько занижена, так как калибровка детектора с поверхностной ионизацией не проводилась и указанная интенсивность соответствует случаю стопроцентной эффективности ионизации молекул соли на нити и сборе ионов коллектором. В реальных условиях пучок ослабляется за счет влияния плотности фонового газа в пространстве “сопло–скиммер” и взаимодействия потока со скиммером [9]. Это подтверждается падением измеренной зависимости интенсивности пучка от давления P_0 , приведенной на рис. 2.

Распределение молекул пучка соли по скоростям и наиболее вероятная скорость частиц в пучке были определены стандартным времяпролетным способом при прерывании пучка вращающимся диском с щелями с последующей регистрацией пучка детектором на известной базе пролета. В качестве детектора использовался вторичный канальный электронный умножитель, регистрирующий ионы после диссоциативной ионизации энергетических молекул пучка на ксеноне. Deta-

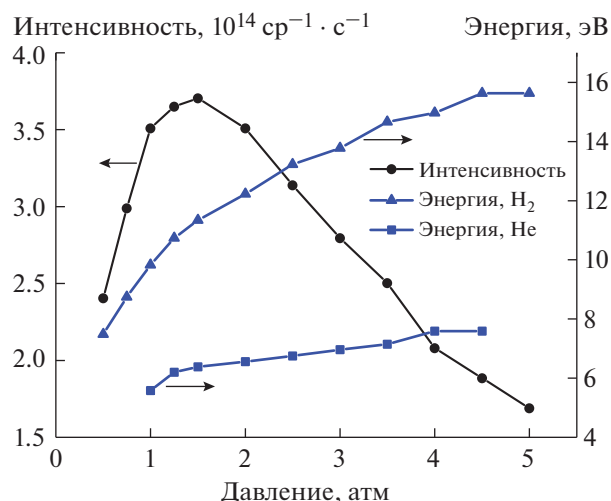


Рис. 2. Зависимости интенсивности и энергии пучка соли от давления торможения.

ли метода приведены в [10], здесь мы отметим только его преимущества:

- 1) селективную ионизацию только молекул пучка;
- 2) отсутствие необходимости в высоком вакууме в камере регистрации;
- 3) отсутствие масс-спектрометра для детектирования пучка, что исключает влияние на времяпролетные спектры ионизирующей и анализирующей системы детектора.

Измеренные времяпролетные спектры аппроксимировались выражением

$$F(t) \propto (1/t^4) \exp[-(m/(2kT_{\parallel}))(L/t - L/t_m)^2],$$

где $T_{\parallel}$ – параллельная температура; L – база пролета; t_m – положение максимума измеренного спектра.

Полученные спектры корректировались на величину аппаратных задержек, и скоростные распределения были восстановлены с учетом влияния искажающих распределение факторов. В результате были определены наиболее вероятные скорости молекул в пучке $U = L/t_m$ и скоростное отношение $S = U/(2kT_{\parallel}/m)^{1/2}$.

На рис. 2 приведены кинетические энергии пучка соли, соответствующие пику скоростных распределений, как функции давления торможения при $T_0 = 1000$ К и $d_0 = 50$ мкм. Как видно из рис. 2, использование водорода и гелия для ускорения смеси позволяет получить регулируемую энергию пучка от 5.5 до 15.5 эВ. Очевидно, что рост энергии с увеличением P_0 не связан с изменением средней массы смеси, так как концентрация тяжелой компоненты в смеси слишком мала ($3 \cdot 10^{-4}$ – $3.6 \cdot 10^{-6}$).

Таблица 1. Экспериментальные условия

Параметры источника		Параметры пучка	
Давление торможения P_0	0.5–5 атм	Интенсивность пучка соли I_s	$3 \cdot 10^{14} \text{ с}^{-1} \cdot \text{ср}^{-1}$
Температура сопла T_0	1000 К	Энергия пучка E	5.5–15.5 эВ
Температура контейнера T_1	820 К	Времяпролетная система	
Давление пара соли P_1	0.01 Торр	База пролета L	390 мм
Диаметр сопла d_0	0.05 мм	Ширина щели a	1 мм
Поток из сопла N	$10^{19}–10^{20} \text{ с}^{-1}$	Диаметр прерывателя D	100 мм
Диаметр скиммера d_s	0.5 мм	Частота вращения n	240 с^{-1}
Расстояние “сопло – скиммер” X_{ns}	5–16 мм	Число щелей m	8

В ранних экспериментальных и теоретических исследованиях смесей атомов и молекул с гелием и водородом было введено понятие эффекта проскальзывания (см., например, обзор [11]), который заключается в неравенстве скоростей молекул газа-носителя и примеси. С ростом P_0 увеличивается число столкновений между частицами потока в пространстве “сопло–скиммер”, что уменьшает проскальзывание, увеличивая скорость примеси. Приведенные на рис. 2 зависимости подтверждают существование большего эффекта проскальзывания для водорода и в области меньших давлений торможения. Максимальная измеренная скорость пучка составила $4.2 \cdot 10^5 \text{ см/с}$ для водорода и $3 \cdot 10^5 \text{ см/с}$ для гелия, что соответствует 0.8 и 0.93 от максимальной расчетной. Разброс молекул пучка соли по энергии был равен 5%.

В табл. 1 приведены экспериментальные условия работы источника, параметры пучка и времяпролетной системы.

ОСОБЕННОСТИ РАБОТЫ ИСТОЧНИКА

Опыт работы с источником показал следующее.

1. Температура контейнера с солью должна быть всегда меньше (по крайней мере, на 100°C) температуры сопла для исключения конденсации молекул примеси в сопле. Для этой же цели при разогреве и охлаждении источника всегда должен быть поток газа-носителя. Эти условия характерны для всех примесных пучков конденсирующихся паров.

2. Первоначальный нагрев только сопла нагревателем мощностью 120 Вт дает температуру $T_0 = 1000 \text{ К}$ и температуру в районе контейнера 820 К. Дополнительный нагрев контейнера вторым нагревателем небольшой мощности (10 Вт) повышает температуру контейнера на 20°C , что приводит к пятикратному увеличению сигнала, регистрируемого детектором соли с поверхностной ионизацией. Это не согласуется с расчетным двукратным увеличением давления пара соли. Кроме

того, при неизменных показаниях термопар в начальный период разогрева наблюдался постепенный рост интенсивности пучка, который стабилизировался примерно через 2 ч. Очевидно, что температура самой соли не определяется однозначно температурой контейнера.

ВЫВОДЫ

Конструкция источника позволяет существенно упростить монтаж и демонтаж контейнера с солью, нагревателей, камеры нагрева с соплом с сохранением отъюстированного положения оси пучка. При удалении контейнера ось источника свободна для проведения оптической юстировки в случае необходимости. Параметры пучка: максимальная энергия 15.5 эВ с разбросом по энергии 5% при интенсивности $10^{14} \text{ ср}^{-1} \cdot \text{с}^{-1}$ — позволяют использовать его для исследования процессов рассеяния, химических реакций, передачи энергии, протекающих в диапазоне энергий в несколько электронвольт.

ФИНАНСИРОВАНИЕ РАБОТЫ

Работа выполнена в рамках Программы фундаментальных научных исследований государственных академий наук на 2013–2020 гг., тема “Фундаментальные физико-химические процессы воздействия энергетических объектов на окружающую среду и живые системы”. Номер регистрации темы в ЦИТИС АААА-А20-120011390097-9.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Abuaf N., Anderson J.B., Andres R.P., Fenn J.B., Marsden D.G.H. // Science. 1967. V. 155. № 3765. P. 997. <https://doi.org/10.1126/science.155.3765.997>
2. Lübbert A., Rotzoll G., Viard R., Schügerl K. // Rev. Sci. Instrum. 1975. V. 46. № 12. P. 1656. <https://doi.org/10.1063/1.1134133>
3. Mariella R.P., Neoh S.K., Herschbach D.R., Klemperer W. // J. Chem. Phys. 1977. V. 67. № 7. P. 2981. <https://doi.org/10.1063/1.435263>

4. *Азриель В.М., Акимов В.М., Русин Л.Ю.* // Хим. физ. 1996. Т. 15. № 3. С. 3. Идентификационный номер: WOS:A1996UK48800001
5. *Азриель В.М., Акимов В.М., Русин Л.Ю., Севрюк М.Б.* // Хим. физ. 2019. Т. 38. № 10. С. 58.
<https://doi.org/10.1134/S0207401X19100029>
6. *Ross K.J., Sonntag B.* // Rev. Sci. Instrum. 1995. V. 66. № 9. P. 4409.
<https://doi.org/10.1063/1.1145337>
7. *Beijerinck H.C.W., Verster N.F.* // Physica B+C. 1981. V. 111. № 2–3. P. 327.
[https://doi.org/10.1016/0378-4363\(81\)90112-1](https://doi.org/10.1016/0378-4363(81)90112-1)
8. *Campargue R.* // Rev. Sci. Instrum. 1964. V. 35. № 1. P. 111.
<https://doi.org/10.1063/1.1718676>
9. *Beijerinck H.C.W., van Gerwen R.J.F., Kerstel E.R.T., Martens J.F.M., van Vliembergen E.J.W., Smits M.R.Th., Kaashoek G.H.* // Chem. Phys. 1985. V. 96. № 1. P. 153.
[https://doi.org/10.1016/0301-0104\(85\)80201-9](https://doi.org/10.1016/0301-0104(85)80201-9)
10. *Азриель В.М., Акимов В.М., Русин Л.Ю.* // ПТЭ. 2007. № 3. С. 88.
11. *Raith W.* // Adv. At. Mol. Phys. 1976. V. 12. P. 281.
[https://doi.org/10.1016/S0065-2199\(08\)60046-9](https://doi.org/10.1016/S0065-2199(08)60046-9)