

Получение высокоэнергетического вторичного импульсного молекулярного пучка

В. М. Апатин, Г. Н. Макаров¹⁾, В. В. Нестеров

Институт спектроскопии РАН, 142190, Троицк, Московская обл., Россия

Поступила в редакцию 3 мая 2001 г.

Предложен метод получения интенсивного вторичного импульсного молекулярного пучка, в котором кинетической энергией молекул можно управлять мощным ИК лазерным излучением путем колебательного возбуждения молекул в самом источнике. Получены интенсивные ($\geq 10^{20}$ молекул/стерад·с) молекулярные пучки SF₆ с кинетической энергией $\cong 1.0$ эВ без носителя и $\cong 1.9$ эВ и $\cong 2.4$ эВ с газиминосителями He (SF₆/He = 1/10) и H₂ (SF₆/H₂ = 1/10), соответственно.

PACS: 33.80.-b, 42.62.Fi, 82.40.Fр, 82.50.Fv

1. Интенсивные пучки ($\geq 10^{20}$ молекул/стерад·с) ускоренных молекул с кинетической энергией в области от примерно одного до нескольких электронвольт требуются в различных областях фундаментальных и прикладных исследований (изучение химических реакций с энергетическими барьерами, упругих и неупругих столкновений, взаимодействия молекул с поверхностью) [1].

Наиболее распространенным способом получения интенсивных молекулярных пучков является их выделение с помощью скиммеров из газодинамически охлажденных струй, получаемых с помощью импульсных сопел [2]. Основными характеристиками импульсных пучков являются: интенсивность, длительность, скорость, а также разброс скоростей молекул в пучке (степень охлаждения газа).

Указанный диапазон энергий труден для освоения, и на сегодня нет универсального метода получения молекулярных (атомных) пучков в этом диапазоне. Существует ряд способов для получения таких пучков [1] (см. также [3, 4] и приведенные в них ссылки). Однако большинство из них довольно сложны (например, реализация оптического пробоя, радиочастотного или дугового разряда внутри сопла) и применимы только к атомам, но не к молекулам.

Наиболее часто для этой цели используется метод аэродинамического ускорения [5, 6], когда исследуемые молекулы разбавляются в более легком газе-носителе (например, в He или H₂), либо нагрев газа над соплом до высоких температур ($T_0 \cong 3000$ К), а также комбинация этих двух методов. Метод аэродинамического ускорения не слишком эффективен в случае, когда отношение масс исследуемого газа и носителя мало.

В случае нагрева сопла энергия молекул в пучке определяется температурой газа до расширения через сопло:

$$\frac{1}{2}mv^2 = \frac{\gamma}{\gamma - 1}k(T_0 - T),$$

где v – установившаяся скорость потока, m – масса молекулы, $\gamma = c_p/c_v$ – отношение удельных теплоемкостей, k – постоянная Больцмана и T – установившаяся температура.

Комбинацией нагрева сопла и аэродинамического ускорения в [7] атомы аргона, разбавленные в гелии, в непрерывном пучке были ускорены до нескольких электронвольт, а в [8] были получены непрерывные пучки атомов ксенона, разбавленных в водороде (Xe/H₂ = 0.23/100), с кинетической энергией до $\cong 30$ эВ.

Нагрев импульсных сопел до высоких температур является проблематичным, поскольку используемые в них материалы (в частности, эластомеры и пластики) разрушаются при высоких ($T \geq 200$ °С) температурах [2]. В [9, 10] для получения ускоренных молекулярных пучков было предложено использовать колебательное возбуждение молекул ИК лазерным импульсом в зоне газодинамического расширения на выходе из сопла. Были получены ускоренные пучки молекул SF₆ и CF₃I с кинетической энергией $\cong 0.5$ эВ и $\cong 0.74$ эВ, соответственно [10, 11]. Однако в этом подходе нельзя реализовать большие плотности энергии возбуждения из-за возникновения оптического пробоя у выходного отверстия сопла. Кроме того, этим способом эффективно можно ускорить лишь небольшую долю молекул в пучке.

Из приведенного выше рассмотрения следует, что для получения высокоэнергетических молекулярных пучков перспективной явилась бы реализация возможности возбуждать молекулы мощным ИК лазер-

¹⁾e-mail: g.makarov@isan.troitsk.ru

ным излучением внутри самого источника импульсного пучка, то есть до истечения газа из сопла. Именно такая возможность реализована в предложенном в данной работе методе получения вторичного импульсного молекулярного пучка, в результате чего получены интенсивные пучки ускоренных молекул.

2. В предложенном методе в качестве источника вторичного молекулярного пучка используется скачок уплотнения (ударная волна) [12–14], который формируется при взаимодействии импульсного газодинамически охлажденного молекулярного потока с твердой поверхностью [15, 16]. Суть эксперимента поясняет рис.1. В экспериментах интенсивный

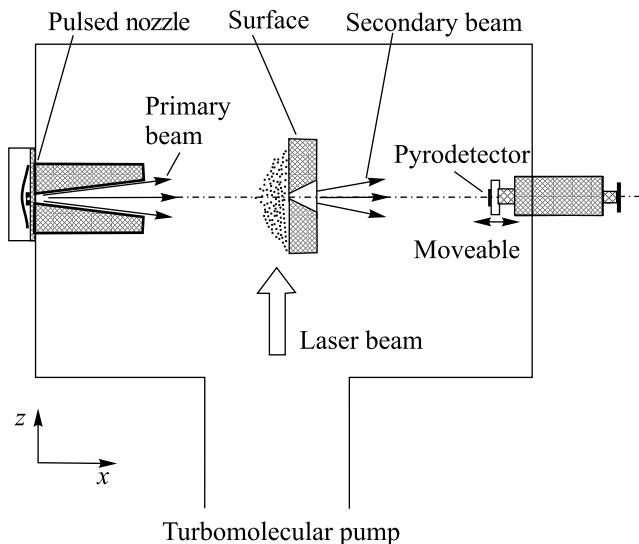


Рис.1. Схема эксперимента. Формирование вторичного молекулярного пучка с помощью подложки с отверстием в виде расходящегося конуса

($\geq 10^{20}$ молекул/стерад·с) широкоапертурный (расходимость $\omega \cong 0.05$ стерад) молекулярный пучок (или поток) падал на твердую поверхность – подложку (использовалась шлифованная подложка из дюралюминия толщиной 7.5 мм, которая располагалась на расстоянии $x \cong 60$ мм от сопла), в центре которой было сделано отверстие в виде расходящегося конуса с входным диаметром $d_{in} \cong 2$ мм и выходным – $d_{out} \cong 5$ мм. Стенки отверстия были полированы.

Когда первичный пучок падал на поверхность, перед ней формировался скачок уплотнения, в котором плотность, давление и температура газа были существенно выше, чем в падающем пучке [17, 18]. По оценкам [17], концентрация молекул SF_6 в скачке уплотнения, в зависимости от интенсивности первичного пучка, в данных экспериментах изменялась от $\cong 10^{16}$ до $\cong 5 \cdot 10^{17}$ см $^{-3}$. Пока перед поверхностью существовал скачок уплотнения, газ из него через

отверстие в подложке истекал в высоковакуумную часть камеры, в результате чего формировался новый, вторичный импульсный молекулярный пучок, характеристики которого, в общем случае, были отличны от характеристик первичного.

Для получения первичного пучка использовалось импульсное сопло типа токовая петля [19]. Диаметр отверстия 0.75 мм. Время открывания $\cong 40$ мкс (по полувысоте). Давление газа над соплом изменялось в диапазоне от $\cong 0.1$ до 7 атм. Срез сопла был выполнен в форме конуса с полным углом раствора 15° . Длина конуса 35 мм. Вакуумная камера, в которой формировался молекулярный пучок, откачивалась до давления $\cong 1 \cdot 10^{-6}$ торр турбомолекулярным насосом. Число молекул, истекающих из сопла за один импульс, зависело от давления газа над соплом и в данных экспериментах изменялось от $\cong 3 \cdot 10^{15}$ до $\cong 1.1 \cdot 10^{17}$ молекула/импульс.

Интенсивность вторичного пучка зависела от интенсивности первичного, а также от диаметра отверстия и угла раствора конуса в подложке. Она возрастала существенно (в 5–6 раз), когда вместо плоской поверхности для формирования скачка уплотнения нами использовался сходящийся полый усеченный конус (или когда вторичный пучок формировался с помощью сходящегося – расходящегося конуса типа сопла Лавалья).

Как видно из рис.1, реализовать возбуждение молекул в скачке уплотнения весьма просто. Когда для получения высокоэнергетических пучков использовалась схема с конусом, сходящаяся часть конуса заменялась четырехгранной полый усеченной пирамидой, изготовленной из тонких пластинок NaCl, которые прозрачны для излучения CO_2 -лазера. Это позволяло возбуждать молекулы внутри пирамиды непосредственно перед выходом из вторичного сопла. Многофотонное поглощение молекул в сильном ИК поле [20] приводило к увеличению их внутренней (главным образом, колебательной) энергии. За счет последующего процесса колебательно-поступательной $V-T$ -релаксации, который имел место при расширении газа в вакуум, происходила передача энергии из колебательных степеней свободы в поступательные, в результате чего молекулы ускорялись.

В экспериментах нами исследовались характеристики вторичного молекулярного пучка, а также возможность получения в нем высокоэнергетических молекул. Измерения проводились с помощью времяпролетного метода, основанного на применении в качестве детектора молекулярного пучка неохлаждаемого пироэлектрического приемника с временным

разрешением $\cong 3 - 5$ мкс [21, 22]. Измерялись времяпролетные спектры молекул на различных расстояниях от источников первичного и вторичного пучков, из которых определялись скорости пучков и разбросы скоростей молекул в пучках.

3. На рис.2 показана временная эволюция импульса молекулярного пучка (времяпролетного спектра молекул), проходящего через полый конус, при увеличении давления газа ($SF_6/H_2 = 1/6$) над соп-

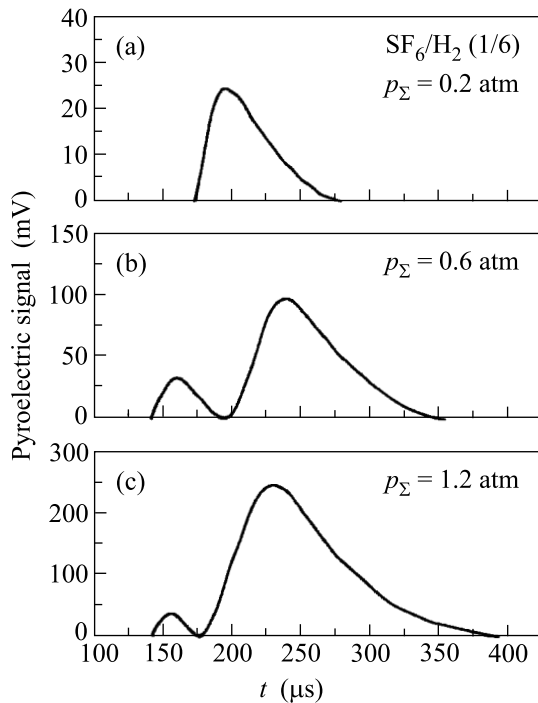


Рис.2. Временная эволюция импульса молекулярного пучка ($SF_6/H_2 = 1/6$), проходящего через полый сходящийся усеченный конус (входной диаметр конуса 11 мм, выходной – 2.8 мм, длина – 32 мм). Расстояние от сопла до перетяжки конуса 83 мм, а от сопла до детектора – 143 мм

лом. Расстояние от сопла до перетяжки конуса – 83 мм, а до детектора – 143 мм. При малом давлении газа над соплом ($p_{\Sigma} \leq 0.2$ атм), когда интенсивность первичного пучка мала и скачок уплотнения перед поверхностью еще не формируется [17, 18], через конус проходит только первичный молекулярный пучок (рис.2а). С увеличением давления газа над соплом, когда в конусе (а в случае рис.1 – перед поверхностью) формируется скачок уплотнения, происходит укорочение импульса первичного пучка. Одновременно появляется и начинает резко возрастать по амплитуде импульс вторичного молекулярного пучка (рис.2б,с). При сравнительно высокой интенсивности первичного молекулярного пучка

($\geq 10^{20}$ молекул/стерад·с) интенсивность вторичного пучка была соизмерима с интенсивностью невозмущенного первичного пучка (когда не было подложки на его пути).

На рис.3 показаны зависимости интенсивностей невозмущенного первичного (кривая 1) и вторичного (кривая 2) молекулярных пучков от давления SF_6

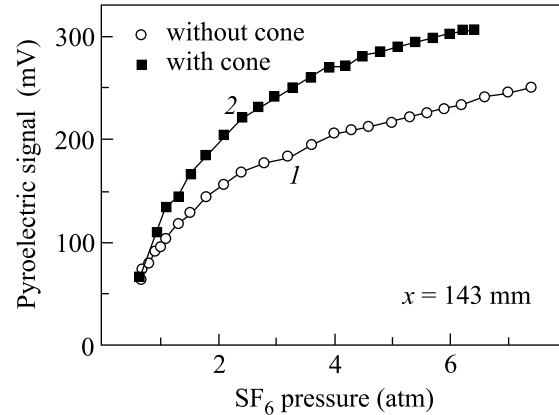


Рис.3. Зависимости пироэлектрических сигналов, индуцированных на детекторе невозмущенным первичным молекулярным пучком (кривая 1) и вторичным молекулярным пучком (кривая 2) от давления SF_6 над соплом. Вторичный пучок формировался с помощью сходящегося – расходящегося конуса типа сопла Лавала. Параметры конуса и условия эксперимента приведены в тексте

над соплом. Вторичный пучок был сформирован с помощью сходящегося – расходящегося полого конуса типа сопла Лавала ($d_{in} = 14$ мм, $d_0 = 2$ мм, $d_{out} = 7$ мм, полная длина – 40 мм, длина сходящейся части – 30 мм). Расстояние от сопла до детектора было 143 мм, а от перетяжки конуса до детектора – 79 мм. Видно, что при давлении SF_6 над соплом $p \geq 1.0$ атм пироэлектрический сигнал, индуцированный на детекторе вторичным молекулярным пучком, больше такового от первичного пучка. Поэтому, даже с учетом примерно квадратичной зависимости пироэлектрического сигнала от расстояния между источником пучка и детектором, интенсивность вторичного пучка в случае рис.3 сопоставима с интенсивностью первичного.

В экспериментах было установлено, что длительность вторичного молекулярного пучка, его скорость и разброс скоростей молекул в нем не сильно отличаются от таковых в первичном пучке. Наиболее сильно отличаются, как и ожидалось, разбросы скоростей молекул. Во вторичном пучке он был на 20–30% больше, чем в первичном. Так, например, в случае, когда вторичный пучок формировался с помо-

Результаты по ускорению SF₆ во вторичном молекулярном пучке

Состав газа	Давление над соплом, атм.	Линия CO ₂ -лазера	Плотность энергии, Дж/см ²	Средняя скорость молекул в пучке, м/с		Кинетическая энергия молекул, эВ	
				v_0	V_L	E_{kin}^0	E_{kin}^L
SF ₆	6.6	10P(26)	3.7	460	1150	0.163	1.0
SF ₆ +H ₂ (1:10)	3.2	10P(16)	3.5	1020	1765	0.8	2.40
SF ₆ +He (1:10)	4.0	10P(20)	3.7	1050	1580	0.85	1.92

стью конуса, параметры которого приведены выше, а давление SF₆ над соплом было 6.6 атм, скорости молекулярных пучков и разбросы скоростей в первичном и вторичном молекулярных пучках составляли соответственно: $v_1 \cong 480$ м/с, $\Delta v_1 \cong 77$ м/с и $v_2 \cong 447$ м/с, $\Delta v_2 \cong 87$ м/с. Из приведенного примера следует, что во вторичном пучке также имело место довольно сильное охлаждение газа (число Маха составляло $M_2 \cong v_2/\Delta v_2 \cong 5$).

На рис.4 приведена зависимость скорости вторичного молекулярного пучка SF₆ от плотности энергии излучения CO₂-лазера. Молекулы возбужда-

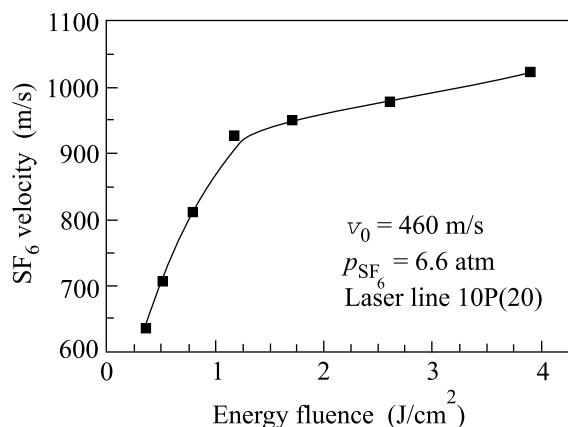


Рис.4. Зависимость скорости вторичного молекулярного пучка SF₆ от плотности энергии лазерного излучения. Молекулы возбуждались на частоте 944.2 см⁻¹ (линия 10P(20) лазера). Давление SF₆ над соплом 6.6 атм

лись в источнике вторичного пучка непосредственно перед выходом из сопла (внутри изготовленной из пластинок NaCl полой усеченной четырехгранной пирамиды, которая прикреплялась к передней стенке подложки с конусным отверстием (см. рис.1)). Лазер был настроен на частоту 944.2 см⁻¹ (линия 10P(20) лазера), резонансную с колебанием ν_3 SF₆ ($\cong 948$ см⁻¹ [23]). Средняя скорость молекул без лазерного возбуждения была $v_0 = 460$ м/с, а при ла-

зерном возбуждении она достигала значения $v_L > 1000$ м/с.

В таблице приведены результаты по ускорению SF₆ во вторичном импульсном пучке. Нами были получены молекулярные пучки SF₆ с кинетической энергией $E_{kin}^L \cong 1$ эВ ($v_L \cong 1150$ м/с) без носителя и $E_{kin}^L \cong 1.9$ эВ и $E_{kin}^L \cong 2.4$ эВ с газами-носителями He и H₂, соответственно. Эти величины существенно превышают аналогичные данные, полученные в [4, 10].

Таким образом, предложенный в данной работе метод позволяет получать интенсивные молекулярные пучки, в которых кинетической энергией молекул можно управлять путем их колебательного возбуждения мощным ИК лазерным импульсом в самом источнике. В заключение отметим, что путем диссоциации молекул ИК или УФ лазерным излучением во вторичном источнике или в самом пучке можно получать также ускоренные радикалы.

Авторы выражают благодарность В. Н. Лохману и А. Н. Петину за техническую помощь. Работа частично поддержана Российским фондом фундаментальных исследований, грант # 00-03-33003-а и частично Американским фондом гражданских исследований и развития для независимых государств бывшего Советского Союза (CRDF), грант # RC1-2206.

1. H. Pauly, *High Energy Beam Sources*, in *Atomic and Molecular Beam Methods*, Ed. G. Scoles, Oxford University Press, New York, 1988.
2. W. R. Gentry, *Low-Energy Pulsed Beam Sources*, in: *Atomic and Molecular Beam Methods*, Ed. G. Scoles, Oxford University Press, New York, 1988.
3. J. M. Girard, A. Lebehot, and R. Compargue, *J. Phys.* **D26**, 1382 (1993).
4. Г. Н. Макаров, *ЖЭТФ* **108**, 404 (1995).
5. E. W. Becker, K. Bier, and H. Burghoff, *Z. Naturforsch.* **10a**, 7 (1955).
6. E. Kolodney and A. Amirav, *Chem. Phys.* **82**, 269 (1983).

7. R. Comparque, A. Lebehot, J. C. Lemonnier, and D. Marette, in: *Rarefied gas Dynamics*, Ed. S. S. Fisher, AIAA, New York, 1980, p. 823.
8. U. Buck, E. Lessner, and D. Pust, *J. Phys.* **B13**, L125 (1980).
9. В. Н. Лохман, Г. Н. Макаров, Письма в ЖЭТФ **61**, 172 (1995).
10. G. N. Makarov, *Chem. Phys. Lett.* **237**, 361 (1995).
11. В. Н. Лохман, Г. Н. Макаров, Д. Д. Огурок и др., *Хим. физ.* **17**, 35 (1998).
12. Я. Б. Зельдович, Ю. П. Райзер, *Физика ударных волн и высокотемпературных гидродинамических явлений*, М.: Наука, 1966.
13. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Гидродинамика*, М.: Наука, 1986.
14. Г. Н. Абрамович, *Прикладная газовая динамика*, ч. 1, М.: Наука, 1991.
15. Г. Н. Макаров, А. Н. Петин, Письма в ЖЭТФ **77**, 583 (2000).
16. G. N. Makarov, A. N. Petin, *Chem. Phys. Lett.* **323**, 345 (2000).
17. Г. Н. Макаров, А. Н. Петин, *ЖЭТФ* **79**, 5 (2001).
18. G. N. Makarov, A. N. Petin, *Chem. Phys.* **266**, 125 (2001).
19. W. R. Gentry and C. F. Giese, *Rev. Sci. Instrum.* **49**, 595 (1978).
20. V. N. Bagratashvili, V. S. Letokhov, A. A. Makarov, and E. A. Ryabov, *Multiple Photon Infrared Laser Photophysics and Photochemistry*, N.Y., Harwood, Academic, 1985.
21. V. M. Apatin, L. M. Dorozhkin, G. N. Makarov, and L. M. Pleshkov, *Appl. Phys.* **B29**, 273 (1982).
22. В. М. Апатин, Г. Н. Макаров, *ЖЭТФ* **84**, 15 (1983).
23. R. S. McDowell, J. B. Krohn, H. Flicker, and M. C. Vasquez, *Spectrochimica Acta.* **42A**, 351 (1986).