

# ГЕНЕРАЦИЯ ИНТЕНСИВНЫХ ИМПУЛЬСНЫХ МОЛЕКУЛЯРНЫХ ПУЧКОВ НИЗКОЙ КИНЕТИЧЕСКОЙ ЭНЕРГИИ

*Г. Н. Макаров\**

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

Поступила в редакцию 29 августа 2002 г.

Описан метод получения интенсивных импульсных молекулярных пучков низкой кинетической энергии. Метод основан на формировании холодного ( $\approx 77$  К) скачка уплотнения за счет взаимодействия интенсивного импульсного газодинамически охлажденного молекулярного пучка с твердой поверхностью и использовании его в качестве источника вторичного пучка для получения низкоэнергетических молекул. С помощью предложенного метода получены интенсивные молекулярные пучки  $H_2$ , He,  $CH_4$ ,  $N_2$ , Kr с кинетической энергией молекул, меньшей или равной 10 мэВ, и молекулярные пучки  $H_2/Kr$  и  $He/Kr$  с кинетической энергией молекул  $H_2$  и He, меньшей 1 мэВ. Показано, что путем изменения интенсивности исходного пучка или температуры газа в скачке уплотнения можно управлять энергией (скоростью) молекул в низкоэнергетическом пучке.

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

## 1. ВВЕДЕНИЕ

В настоящее время широкое применение в научных исследованиях находят молекулярные (атомные) пучки [1], в том числе низкоэнергетические [2], в которых кинетическая энергия молекул (атомов) значительно меньше их тепловой энергии при комнатной температуре. Интенсивные пучки молекул ( $\geq 10^{20}$  молекул/ср.с) с кинетической энергией в области от одного до нескольких десятков миллиэлектронвольт требуются в экспериментах по исследованию химических реакций, упругих и неупругих столкновений, взаимодействия молекул с поверхностью [1–3]. В последнее время они стали применяться также в экспериментах по пленению молекул в ловушках [4, 5].

Наиболее распространенным способом получения интенсивных молекулярных пучков является их выделение с помощью скиммеров из газодинамически охлажденных струй, получаемых с помощью импульсных сопел [6]. При этом кинетическая энергия

молекул в пучке определяется температурой газа  $T_0$  до расширения через сопло:

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

где  $v$  — установившаяся скорость потока,  $m$  — масса молекулы,  $\gamma = c_p/c_v$  — отношение удельных теплоемкостей,  $k$  — постоянная Больцмана и  $T$  — установившаяся температура. При комнатной температуре газа в источнике кинетическая энергия молекул в пучке, в зависимости от величины показателя  $\gamma$ , составляет от  $E_{kin} \approx 50$ –60 мэВ (для одноатомного газа) до  $E_{kin} \geq 150$ –200 мэВ (для газа многоатомных молекул).

Из соотношения (1) следует, что для получения низкоэнергетических молекулярных пучков необходимо охлаждать газ в источнике. Однако охлаждение импульсных источников молекулярных пучков до низких температур является проблематичным, поскольку используемые в них материалы (в частности, эластомеры и пластики) теряют свои упругие и пластические свойства и становятся хрупкими. Кроме того, с понижением температуры уменьшается давление газа, вследствие чего становится трудно формировать газодинамически охлажденные струи.

\*E-mail: g.makarov@isan.troitsk.ru

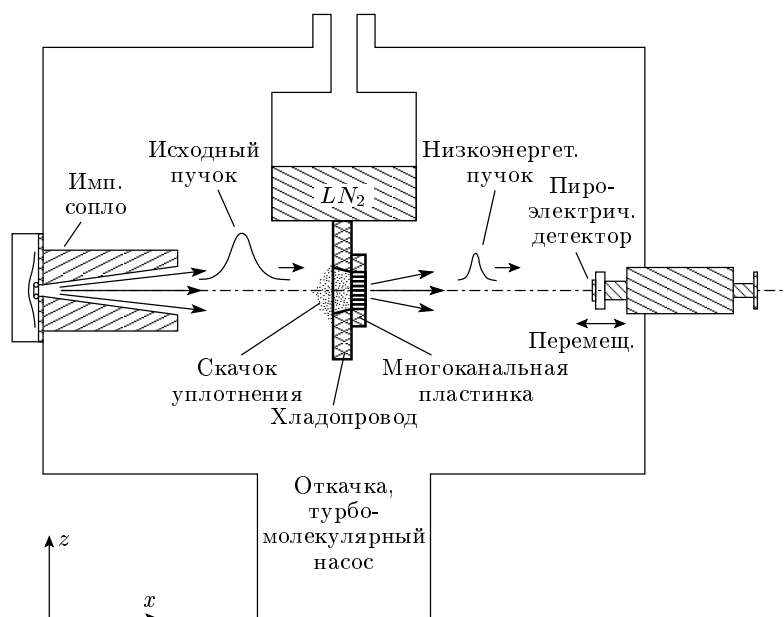


Рис. 1. Схема эксперимента

Молекулярные пучки низкой кинетической энергии ( $\leq 50$  мэВ) обычно получают с помощью эффузионных источников, работающих как при комнатной температуре, так и с охлаждением газа в них до температуры жидкого азота, а в случае получения пучков He — до температуры жидкого гелия [2, 7]. Кинетическая энергия молекул в эффузионном пучке определяется температурой газа в источнике ( $E_{kin} \approx kT_0$ ). Однако интенсивности получаемых таким способом молекулярных пучков сравнительно малы ( $\leq 10^{16}$ – $10^{17}$  молекул/ср·с) [2]. К тому же при этом велик разброс скоростей молекул в пучке. Поэтому возникает необходимость выделять моноэнергетические молекулы, что приводит к дополнительному уменьшению интенсивности пучка.

Вместе с тем во многих экспериментах с молекулярными пучками именно интенсивность пучка является определяющим фактором [1, 2, 6]. Поэтому разработка методов получения интенсивных пучков низкоэнергетических молекул является весьма актуальной задачей. Недавно в [8] нами был предложен сравнительно простой метод генерации таких пучков и получены первые результаты. В данной работе дается подробное описание предложенного метода и представлены результаты детального исследования процесса генерации интенсивных низкоэнергетических молекулярных пучков с управляемой кинетической энергией в диапазоне от одного до нескольких десятков миллиэлектронвольт.

## 2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ УСТАНОВКА И МЕТОД

В предложенном методе для получения низкоэнергетических импульсных молекулярных пучков используется скачок уплотнения (ударная волна) [9–11], который формируется при взаимодействии интенсивного импульсного газодинамически охлажденного молекулярного пучка (или потока) с твердой поверхностью. Суть метода поясняет рис. 1. В экспериментах 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 многоканальную пластинку. Пластика была изготовлена из дюралюминия, ее толщина равнялась  $L = 4$  мм, а диаметр каналов в ней  $d_0 = 0.5$  мм. Каналы расположены по схеме плотной упаковки. Расстояние между центрами отверстий 0.75 мм. В хладопроводе имелось отверстие, выполненное в виде сходящегося конуса. Диаметры входного и выходного отверстий конуса составляли соответственно 11 и 9 мм. Толщина хладопровода равнялась 8 мм. Расстояние от среза сопла до поверхности многоканальной пластинки составляло 70 мм. Чтобы исключить возможность работы пластинки в «прозрачном» режиме, она поворачивалась на небольшой угол  $\alpha \geq d_0/L \approx 7^\circ$  по отношению к оси падающего пучка.

При взаимодействии интенсивного сверхзвукового молекулярного пучка с охлажденной многоканальной пластинкой перед ней, а также в каналах формировался холодный скачок уплотнения [12, 13], характерные размеры которого были порядка средней длины свободного пробега молекул  $\Lambda$  [9, 10]. Такой скачок уплотнения является удобным источником для генерации интенсивных вторичных импульсных молекулярных пучков [14–16]. При условиях  $\Lambda_{eff} \geq d_0$  ( $\Lambda_{eff}$  — эффективная средняя длина свободного пробега молекул в каналах,  $\Lambda_{eff} > \Lambda$  [2]) газ при прохождении через каналы успевал охладиться до температуры стенок (примерно до температуры жидкого азота), в результате чего из скачка уплотнения генерировался пучок низкоэнергетических молекул. Указанное условие в наших экспериментах реализовывалось практически всегда. В результате мы имели возможность получать интенсивные газодинамически охлажденные молекулярные пучки, кинетическая энергия молекул в которых определялась, согласно соотношению (1), температурой газа в скачке уплотнения ( $\approx 77$  К). При низком же давлении газа в скачке уплотнения, когда газодинамическое истечение не могло реализоваться, имел место переход к эффузионному истечению, поэтому средняя скорость молекул в пучках была близка к средней скорости молекул при азотной температуре. Естественно, при этом увеличивался разброс скоростей молекул в пучках.

В экспериментах использовалось импульсное сопло типа токовой петли [17]. Диаметр отверстия равнялся 0.75 мм. Время открывания в зависимости от состава и давления газа над соплом составляло около 70–100 мкс (на полувысоте). Давление газа над соплом изменялось в диапазоне приблизительно от 0.1 до 7 атм. Срез сопла был выполнен в форме конуса с полным углом раствора  $15^\circ$ . Длина конуса 35 мм. Вакуумная камера, в которой формировался молекулярный пучок, откачивалась до давления приблизительно  $1 \cdot 10^{-6}$  Торр турбомолекулярным насосом. Число молекул, истекающих из сопла за один импульс, зависело от давления газа над соплом и в данных экспериментах изменялось примерно от  $8 \cdot 10^{15}$  до  $2 \cdot 10^{18}$  молекул/импульс. Метод измерения числа молекул в импульсе подробно описан в работах [18, 19].

В экспериментах исследовались зависимости интенсивности и скорости низкоэнергетических молекулярных пучков от интенсивности и скорости исходного пучка и от температуры газа в скачке уплотнения, а также измерялся разброс скоростей молекул (степень охлаждения газа) в обоих пучках. Из-

мерения проводились с помощью времяпролетного метода, основанного на применении в качестве детектора молекулярного пучка пироэлектрического приемника (ПЭП) с временным разрешением около 3–5 мкс [20, 21]. Размеры активного элемента ПЭП были  $4 \times 4$  мм<sup>2</sup>. Приемником детектировались молекулы, распространяющиеся внутри телесного угла, определяемого размерами активного элемента приемника и расстоянием от сопла до детектора. Устройство ПЭП подробно описано в [22]. ПЭП мог перемещаться вдоль оси пучка с помощью механического устройства. Это позволяло нам измерять времяпролетные спектры молекул на различных расстояниях от сопла. Из них определялись скорости пучков и разбросы скоростей молекул в пучках.

### 3. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Эксперименты проводились с молекулярными пучками  $H_2$ , He,  $CH_4$ ,  $N_2$  и Kr. Во всех случаях наблюдалась генерация молекулярных пучков, имеющих малые скорости. На рис. 2 показана зависимость кинетической энергии низкоэнергетического молекулярного пучка He от давления газа над соплом (кривая 1). Для сравнения показаны также аналогичные зависимости для вторичного пучка в случае, когда газ в скачке уплотнения не охлаждался ( $T_0 \approx 300$  К) (кривая 2), и для исходного пучка (кривая 3). Видно, что с уменьшением интенсивности

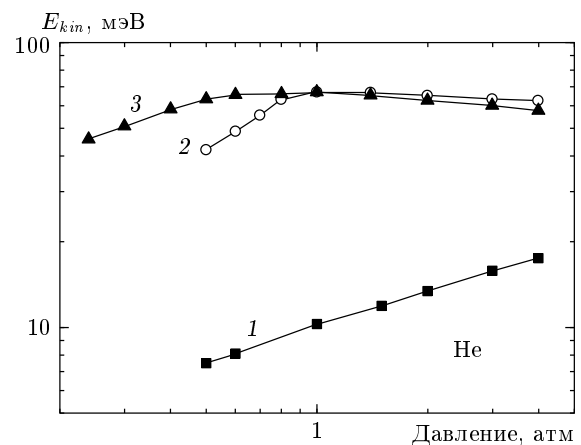


Рис. 2. Зависимость кинетической энергии низкоэнергетического молекулярного пучка He от давления газа над соплом (кривая 1). Кривые 2 и 3 представляют, соответственно, аналогичные зависимости для вторичного пучка в случае, когда газ в скачке уплотнения не охлаждался, и для исходного молекулярного пучка

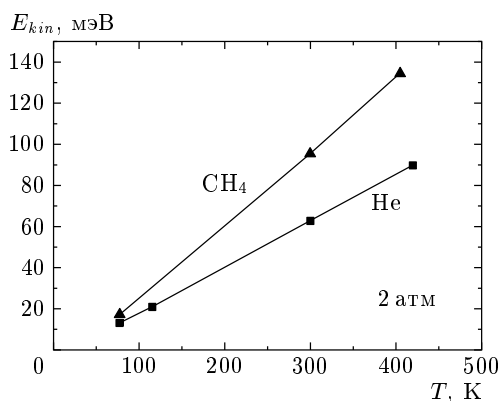


Рис. 3. Зависимости кинетической энергии молекулярных пучков He и  $\text{CH}_4$  от температуры газа в скачке уплотнения. Давление газа над соплом 2.0 атм

исходного пучка (давления газа над соплом) кинетическая энергия молекул в низкоэнергетическом пучке заметно уменьшается, приближаясь к значению средней энергии атомов He при  $T \approx 77$  К, равному приблизительно 6.6 мэВ.

На рис. 3 приведены зависимости кинетической энергии пучков He и  $\text{CH}_4$  от температуры газа в скачке уплотнения, полученные при давлении газа над соплом 2 атм. Отметим, что в исследуемом диапазоне кинетическая энергия молекул уменьшается с ростом температуры несколько быстрее, чем линейно. Это связано с тем, что в условиях данных экспериментов с уменьшением температуры уменьшалось также давление газа в скачке уплотнения (в источнике низкоэнергетического пучка), что и приводило к дополнительному уменьшению скорости пучков.

В таблице приведены результаты измерений средней скорости и энергии низкоэнергетических молекулярных пучков  $\text{H}_2$ ,  $\text{CH}_4$ ,  $\text{N}_2$  и Кг. Показаны и результаты измерений разброса скоростей молекул в пучках. Для сравнения приведены также аналогичные данные для исходного пучка. В экспериментах были получены молекулярные пучки  $\text{H}_2$  с кинетической энергией  $E_{kin} \leq 6.9$  мэВ и молекулярные пучки  $\text{CH}_4$ ,  $\text{N}_2$  и Кг с кинетической энергией  $E_{kin} \leq 11.5$ ,  $\leq 9.9$  и  $\leq 7.1$  мэВ, соответственно. Отметим, что средняя скорость атомов Кг в пучке при этом составляла  $v \approx 130$  м/с.

Нами были проведены также эксперименты с молекулярными пучками  $\text{H}_2/\text{Кг}$  и He/Кг (при соотношении давлений 1/5 в обоих случаях). При давлении газа над соплом 0.8 атм и температуре газа в скачке

уплотнения  $T \approx 77$  К скорости молекулярных пучков составляли приблизительно 165 м/с, что соответствовало кинетической энергии молекул  $\text{H}_2$  и He в пучках  $E_{kin} \leq 0.3$  мэВ и  $E_{kin} \leq 0.6$  мэВ соответственно.

Исследовалась также возможность генерации низкоэнергетических молекулярных пучков с помощью охлажденного до  $T \approx 77$  К сходящегося–расходящегося конуса типа сопла Лавала. Конус был изготовлен из дюралюминия. Диаметр входного отверстия  $d_{in} = 13$  мм, диаметр перетяжки  $d_0 = 2.5$  мм, диаметр выходного отверстия  $d_{out} = 6$  мм. Полная длина конуса равнялась 30 мм, а длина сходящейся части — 24 мм. Отметим, что именно с помощью сходящегося–расходящегося конуса типа сопла Лавала в [14–16] были получены интенсивные вторичные пучки из формирующегося скачка уплотнения. Чтобы исключить «прозрачный» режим работы конуса, он был незначительно (на 1.5–2 мм) смещен относительно оси исходного пучка. В этих экспериментах были получены молекулярные пучки He и  $\text{H}_2$  со средней скоростью молекул в них  $v \approx 640$  м/с и  $v \approx 1300$  м/с, что соответствовало кинетической энергии молекул He и  $\text{H}_2$   $E_{kin} \approx 8.6$  мэВ и  $E_{kin} \approx 17.8$  мэВ соответственно. Интенсивности пучков были сопоставимы с интенсивностями пучков, полученных с помощью многоканальной пластинки. Однако в случае с конусом низкоэнергетические пучки генерировались при значительно меньшей интенсивности исходного молекулярного пучка (при меньшем давлении газа над соплом). Так, например, низкоэнергетические пучки He,  $\text{H}_2$ , и  $\text{CH}_4$  генерировались при давлениях газа над соплом  $p \leq 0.6$ ,  $\leq 0.4$  и  $\leq 0.3$  атм соответственно. Это связано с тем, что приведенное выше условие для охлаждения газа ( $\Lambda_{eff} \geq d_0$ ) в случае с конусом выполнялось при меньшей концентрации газа в скачке уплотнения, поскольку диаметр перетяжки конуса был значительно больше диаметра каналов в пластинке. При более высоких давлениях газа над соплом это условие не выполнялось. Поэтому газ внутри конуса не успевал охладиться до температуры стенок. В результате генерировались пучки молекул с высокой кинетической энергией.

Чтобы сравнить интенсивности низкоэнергетических пучков с интенсивностями исходных молекулярных пучков, нами исследовались зависимости сигналов, индуцированных на детекторе первичными и вторичными пучками, от давления газа над соплом. На рис. 4 показаны такие зависимости для молекулярного пучка He. Расстояние от сопла до детектора равняется 143 мм, а от многоканальной пла-

Результаты измерений скорости и энергии молекулярных пучков

Состав и давление газа над соплом, атм	Исходный пучок			Низкоэнергетический пучок			
	$v$ , м/с	$E_{kin}$ , мэВ	$v/\Delta v$	$v$ , м/с	$E_{kin}$ , мэВ	$v/\Delta v$	
H <sub>2</sub>	1.9	2950	91.7	8.5	1050	11.6	4.3
	0.6	2620	72.4	4.2	810	6.9	1.3
CH <sub>4</sub>	2.0	1330	149.2	10.3	450	17.1	4.7
	0.6	1250	131.8	4.5	370	11.5	2.1
N <sub>2</sub>	2.2	910	122.2	9.3	355	18.6	5.1
	1.0	860	109.2	8.7	260	9.9	2.7
Kr	2.0	385	62.5	6.5	168	11.9	1.8
	1.0	360	54.7	5.4	130	7.1	

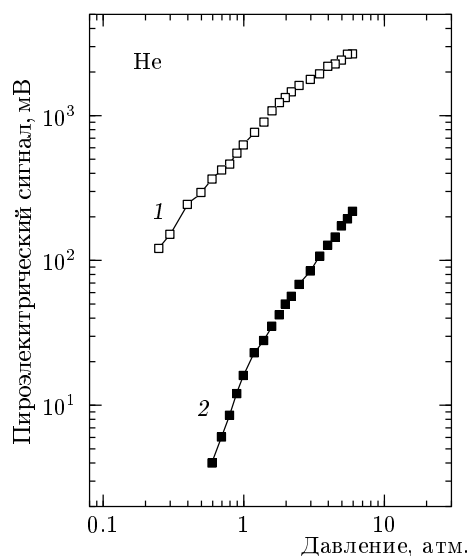


Рис. 4. Зависимости пироэлектрических сигналов, индуцированных на детекторе исходным молекулярным пучком He (кривая 1) и вторичным молекулярным пучком в случае, когда газ в скачке уплотнения не охлаждался (кривая 2), от давления газа над соплом. Расстояние от сопла до детектора 143 мм, а от многоканальной пластинки до детектора — 73 мм

стинки до детектора — около 73 мм. Видно, что при давлении газа над соплом  $p \geq 1$  атм сигнал, индуцированный вторичным пучком, в 20–30 раз меньше сигнала, индуцированного первичным пучком. Если учесть разницу в расстояниях между источниками первичного и вторичного пучков и детектором, то получим, что интенсивность вторичного молекулярного пучка He примерно на два порядка меньше интенсивности первичного пучка. Интенсивность низкоэнергетического пучка He была еще меньше, поскольку уменьшение температуры (а, следовательно, и давления) газа в скачке уплотнения также приводило к уменьшению интенсивности пучка.

Интенсивности пучков определялись на основе измерений расхода газа за  $n$  импульсов сопла и геометрических размеров (протяженности и сечения) пучков (см., например, [18, 19]). Эти измерения позволяют с довольно хорошей точностью определить интенсивности пучков [18, 19]. Определим, например, интенсивность молекулярного пучка He, используя результаты измерений. Как было установлено по расходу газа, полное число атомов He, истекающих из сопла за один импульс при давлении над соплом 2 атм, составляло приблизительно  $7 \cdot 10^{17}$ . Поскольку длительность импульса исходного молекулярного пучка была около 100 мкс, а

его расходимость составляла  $\omega \approx 0.05$  ср, интенсивность пучка была  $I_1 \approx 1.4 \cdot 10^{23}$  молекул/ср·с. Интенсивность низкоэнергетического молекулярного пучка в рассматриваемых условиях была примерно в 100–150 раз меньше, то есть она составляла  $I_2 \approx 10^{21}$  молекул/ср·с. Следовательно, интенсивности полученных нами низкоэнергетических молекулярных пучков были на четыре–пять порядков больше интенсивностей, характерных для «стандартных» эффузионных пучков.

Концентрация атомов гелия в исходном пучке и в скачке уплотнения была оценена на основе результатов измерений полного числа молекул в пучке и его объема. Метод подробно описан в [18, 19]. Например, при длительности импульса около 100 мкс и средней скорости пучка приблизительно 1750 м/с протяженность молекулярного пучка He в пространстве составляла примерно 17.5 см. Поперечное сечение пучка на поверхности многоканальной пластинки было равно приблизительно  $2.4 \text{ см}^2$  (оно определялось углом раствора конуса и расстоянием от сопла до многоканальной пластинки). Следовательно, объем пучка вблизи поверхности пластинки составлял  $V_b \approx 42 \text{ см}^3$ . Поэтому при давлении газа над соплом 2 атм концентрация атомов гелия в исходном пучке была  $N_1 \approx 1.7 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-3}$ . Концентрация атомов в скачке уплотнения  $N_2$  была оценена из соотношения для предельного значения концентрации в прямом скачке [9–11]:

$$N_2/N_1 \approx \frac{\gamma + 1}{\gamma - 1}, \quad \gamma = 1.66$$

(см. [23]). Получено значение  $N_2 \approx 7 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-3}$ .

#### 4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Таким образом, описанный в данной работе метод позволяет получать интенсивные импульсные молекулярные пучки с кинетической энергией в области от одного до нескольких десятков миллиэлектронвольт. Показано, что управлять энергией молекул в пучках можно путем изменения интенсивности исходного пучка или температуры газа в скачке уплотнения. Установлено, что интенсивности полученных нами низкоэнергетических молекулярных пучков на четыре–пять порядков больше интенсивностей, характерных для «стандартных» эффузионных пучков, с помощью которых обычно получают низкоэнергетические молекулы. В случае генерации низкоэнергетических молекулярных пучков He и H<sub>2</sub> для более глубокого охлаждения газа в скачке

уплотнения и получения еще более медленных пучков можно использовать жидкий гелий. В заключение отметим, что если использовать в качестве газа-носителя Kr или Xe, то описанным методом можно получить молекулярные пучки CO, N<sub>2</sub>, NO, O<sub>2</sub> с кинетической энергией  $E_{kin} \leq 1\text{--}2$  мэВ.

В конце заметим, что медленные импульсные пучки имеют малую протяженность в пространстве. Это является преимуществом в ряде экспериментов по возбуждению молекул в пучках лазерным излучением. При малой протяженности пучка удастся возбуждать или диссоциировать высокоинтенсивными лазерными импульсами практически все молекулы в пучке и тем самым значительно увеличить эффективность воздействия лазерного излучения на молекулярный пучок [24, 25].

Автор выражает благодарность В. М. Апатину и А. Н. Петину за техническую помощь. Работа выполнена при частичной финансовой поддержке РФФИ (проект 00-03-33003).

#### ЛИТЕРАТУРА

1. *Atomic and Molecular Beam Methods*, ed. by G. Scoles, Oxford University Press, New York (1988).
2. H. Pauly, *Other Low-Energy Beam Sources*, in: *Atomic and Molecular Beam Methods*, ed. by G. Scoles, Oxford University Press, New York (1988).
3. R. Vetter, Ch. Naulin, and M. Costes, XVIII Int. Symp. on Molecular Beams, Ameland, The Netherlands, May 30–June 4 (1999), *Book of Abstracts*, p. 189.
4. С. К. Секацкий, Письма в ЖЭТФ **62**, 900 (1995).
5. R. T. Jongma, G. von Helden, G. Berden, and G. Meijer, *Chem. Phys. Lett.* **270**, 304 (1997).
6. W. R. Gentry, *Low-Energy Pulsed Beam Sources*, in: *Atomic and Molecular Beam Methods*, ed. by G. Scoles, Oxford University Press, New York (1988).
7. R. Feltgen, H. Kirst, K. A. Kohler, and H. Pauly, *J. Chem. Phys.* **76**, 2360 (1982).
8. Г. Н. Макаров, Письма в ЖЭТФ **76**, 341 (2002).
9. Я. Б. Зельдович, Ю. П. Райзер, *Физика ударных волн и высокотемпературных гидродинамических явлений*, Наука, Москва (1966).
10. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Гидродинамика*, Наука, Москва (1986).

11. Г. Н. Абрамович, *Прикладная газовая динамика*, ч. 1. Наука, Москва (1991).
12. Г. Н. Макаров, А. Н. Петин, *Письма в ЖЭТФ* **71**, 583 (2000).
13. G. N. Makarov and A. N. Petin, *Chem. Phys. Lett.* **323**, 345 (2000).
14. В. М. Апатин, Г. Н. Макаров, В. В. Нестеров, *Письма в ЖЭТФ* **73**, 735 (2001).
15. V. M. Apatin, G. N. Makarov, and V. V. Nesterov, *Chem. Phys. Lett.* **347**, 101 (2001).
16. Г. Н. Макаров, *ЖЭТФ* **120**, 1411 (2001).
17. W. R. Gentry and C. F. Giese, *Rev. Sci. Instrum.* **49**, 595 (1978).
18. Г. Н. Макаров, А. Н. Петин, *ЖЭТФ* **119**, 5 (2001).
19. G. N. Makarov and A. N. Petin, *Chem. Phys.* **266**, 125 (2001).
20. V. M. Apatin, L. M. Dorozhkin, G. N. Makarov, and L. M. Pleshkov, *Appl. Phys. B* **29**, 273 (1982).
21. В. М. Апатин, Г. Н. Макаров, *ЖЭТФ* **84**, 15 (1983).
22. R. V. Ambartzumian, L. M. Dorozhkin, G. N. Makarov, A. A. Puzetzkyy, and B. A. Chajanov, *Appl. Phys.* **22**, 409 (1980).
23. *CRC Handbook of Chemistry and Physics*, ed. by D. R. Lide, CRC Press, Boca Raton (1993–1994).
24. G. N. Makarov, D. E. Malinovsky, and D. D. Ogurok, *Laser Chem.* **17**, 205 (1998).
25. Г. Н. Макаров, Д. Е. Малиновский, Д. Д. Огурок, *ЖТФ* **69**, 35 (1999).