

Источники кластерного пучка.

Часть 2. Формирование кластерных пучков в сопловых источниках

А.Ю. Карпенко*, В.А. Батурич†

Институт прикладной физики НАН Украины, ул. Петропавловская, 58, 40030, Сумы, Украина

(Получено 26.07.2012; опубликовано online 29.12.2012)

В статье кратко рассмотрены процессы происходящие при формировании кластерных пучков в источниках кластеров, использующих в работе расширение газовой смеси через сопло. Проанализированы основные параметры газокластерного потока на выходе сопла, приводящие к образованию кластеров. Обсуждаются некоторые аспекты формирования кластерных пучков из аэродинамических потоков.

Ключевые слова: Кластеры, Кластерные ионы, Источник кластерного пучка, Молекулярные пучки, Сопло, Кластерообразование, Расширение в вакуум.

PACS numbers: 29.25. – t, 36.40. – c, 37.20. + j, 47.45. – n, 52.59. – f, 52.65.Yy, 61.46. – w, 81.10. – h, 81.15. – z

1. ВВЕДЕНИЕ

Одним из важных моментов в работе большинства кластерных источников являются характеристики струи газовой смеси истекающей в вакуум. Так для источников со сверхзвуковым расширением необходимо, чтобы в газовом потоке при свободном расширении в вакуум появилась возможность конденсации и происходило дальнейшее формирование кластеров. В источниках, основанных на эрозии поверхности или конденсации в инертном газе, нужно извлечь смесь кластеров и газа носителя из камеры конденсации в высоковакуумную область и сформировать пучок хорошего качества. При этом нельзя допустить, чтобы поток на выходе сопла кластерного источника был разрушен, что привело бы к рассеиванию пучка и потере большинства полученных кластеров.

Получение интенсивных молекулярных пучков путем использования в качестве источника аэродинамического сопла впервые было предложено Кантровицем и Грэм [1]. Их идея состояла в том, чтобы отбирать свободномолекулярный поток не из покоящегося газа, а из газа, разогнанного в сопле конической формы. Впоследствии Беккер и сотрудники [2, 3] экспериментально обнаружили и изучили конденсацию и формирование кластеров при таком истечении газов.

Таким образом, сопло является одним из важнейших компонентов у источников кластерного пучка, и его геометрия будет определять основные параметры, связанные с размером кластеров, интенсивность пучка, его расхождением и температурой. Влияние различных факторов на процессы формирования кластеров при сверхзвуковом расширении были изучены в работе Хагены и Оберта [4]. Для ответа на вопрос о том, почему использование сопла позволяет получать более интенсивные молекулярные пучки и почему и как происходит кластерообразование в сопле, необходимо хотя бы в общих чертах рассмотреть принцип его действия.

2. ПРИНЦИП ДЕЙСТВИЯ СОПЛА

Прежде всего, следует дать определение соплу. Это специально спрофилированный канал, который служит для разгона жидкости или газа до заданной скорости и придания потоку определенного направления. Используя самую простую модель, для анализа течения газа в сопле принимается ряд допущений, в которых газ считается идеальным, а поток одномерным, стационарным и адиабатическим. Чтобы описать поведение газового потока в проводящем канале необходимо получить уравнение, которое связало бы скорость потока газа с площадью поперечного сечения канала. Поскольку в данной системе массовый расход газа постоянен из закона сохранения массы (уравнения неразрывности) следует:

$$\dot{m} = \rho \cdot \bar{v} \cdot S = const, \quad (2.1)$$

где ρ – плотность газа, v – его скорость, а S – площадь поперечного сечения сопла.

Продифференцировав обе части этого уравнения по пространственной координате x , которая является осью симметрии сопла, получим:

$$\frac{1}{\rho} \cdot \frac{d\rho}{dx} + \frac{1}{v} \cdot \frac{dv}{dx} + \frac{1}{S} \cdot \frac{dS}{dx} = 0. \quad (2.2)$$

С другой стороны, с учетом введенных выше допущений, уравнение Эйлера запишется следующим образом:

$$v \frac{dv}{dx} = -\frac{1}{\rho} \cdot \frac{dp}{dx}. \quad (2.3)$$

Определим скорость звука по адиабатической сжимаемости вещества, как $c^2 = d\rho/dp$, где p – локальное давление [5]. Тогда уравнение (2.3) примет вид:

$$v \frac{dv}{dx} = -\frac{1}{\rho} \cdot \frac{dp}{dp} \cdot \frac{dp}{dx} = -\frac{c^2}{\rho} \cdot \frac{d\rho}{dx} \quad (2.4)$$

* ayk@ukr.net

† baturin@ipflab.sumy.ua

Обозначив отношение локальной скорости v к скорости звука c , как число Маха $M = v/c$, можно переписать (2.4) следующим образом:

$$\frac{1}{\rho} \cdot \frac{d\rho}{dx} = -M^2 \cdot \frac{1}{v} \cdot \frac{dv}{dx} \quad (2.5)$$

Исключая $d\rho$ из формул (2.2) и (2.5) можно получить окончательное соотношение:

$$\frac{dS}{S} = \frac{dv}{v} (M^2 - 1). \quad (2.6)$$

Это уравнение называют уравнением обращения воздействия [6]. Оно описывает закономерность изменения скорости потока от площади поперечного сечения.

Из уравнения (2.6) видно, что для увеличения скорости потока v ($dv > 0$) при дозвуковой скорости, когда $v < c$ ($M < 1$) поперечное сечение S должно уменьшаться ($dS < 0$), а при сверхзвуковой скорости при $v > c$ ($M > 1$) поперечное сечение S должно увеличиваться ($dS > 0$) (см. рис. 1). Движение газа со скоростью звука ($M = 1$), соответствует самому узкому месту, когда площадь поперечного сечения достигает экстремума ($dS = 0$) и называется критическим сечением. Таким образом, из вышесказанного можно сделать вывод, что при совмещении сходящегося и расходящегося конусов можно получить устройство, при движении по которому, газовый поток будет ускоряться до сверхзвуковых скоростей. Этот принцип и был использован в 1890 году шведским инженером Лавалем для конструкции сопла паровой турбины.

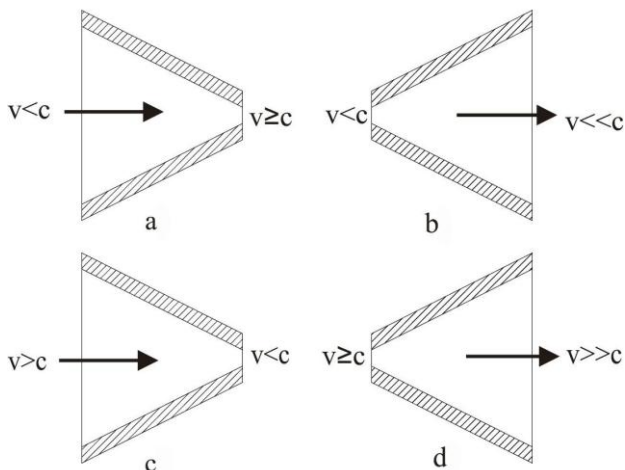


Рис. 1 – Особенности прохождения газового потока по каналу с изменяющимся поперечным сечением

3. СВЕРХЗВУКОВОЕ РАСШИРЕНИЕ

Как видно из рис. 1 и анализа уравнения (2.6) для получения звуковой скорости у газового потока достаточно иметь сопло со сходящейся частью. Такие сопла называют звуковыми и во многих случаях из-за простоты изготовления их используют при проведении экспериментов с молекулярными и кластер-

ными пучками. Во время свободного расширения из звукового сопла в вакуум газовый поток ведет себя так же, как и в соплах конфузурно-диффузорного типа. Выходная часть сопла соответствует минимальной площади поперечного сечения и скорость газового потока на выходе может достигать скорости звука. В дальнейшем, при свободном расширении струи в область с меньшим внешним давлением p_b поперечное сечение струи будет значительно увеличиваться, что приведет к увеличению скорости, которая при этом будет достигать сверхзвуковых значений (см. рис. 2).

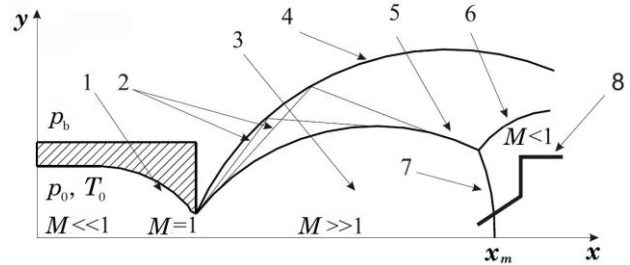


Рис. 2 – Схематическое изображение истечения сверхзвуковой струи в область с низким давлением [7,8,9,10]: 1 – сопло, 2 – волны разряжения, 3 – зона тишины, 4 – граница струи, 5 – скачек уплотнения, 6 – отраженный скачек уплотнения, 7 – центральный скачек уплотнения (диск Маха), 8 – скиммер

Степень ускорения газового потока за счет возникающего градиента давлений зависит от соотношения давлений p_0/p_b . Существует некоторое критическое значение этого отношения, при котором в минимальной апертуре сопла будет достигаться звуковая скорость $v = c$ ($M = 1$) [11, 12]:

$$\frac{p_0}{p_b} \geq \left(\frac{\gamma + 1}{2} \right)^{\frac{\gamma}{\gamma - 1}}, \quad (3.1)$$

где p_0 – давление на входе в сопло, γ – показатель адиабаты, $\gamma = c_p/c_v$, а c_p и c_v – теплоемкости расширяющегося газа при постоянном давлении и объеме. Для одноатомных газов показатель адиабаты равен $\gamma = 5/3$, для двухатомных, к которым относят и воздух, $\gamma = 7/5$, для трёхатомных $\gamma = 4/3$.

При соотношении давлений всех газов меньше, чем в условии (3.1) газовый поток выйдет с дозвуковой скоростью, и дальнейшее ускорение будет невозможно. Удовлетворение этого условия приводит к тому, что поток становится сверхзвуковым ($M > 1$) и с увеличением расстояния от сопла число Маха M будет увеличиваться. Однако в этом случае ситуация будет усложнена формированием ударных волн [7, 8, 9, 10, 12]. Условие постоянства давлений вдоль границы расширяющейся сверхзвуковой струи приводит к искривлению этой границы и образованию волн сжатия, идущих внутри струи газовой смеси (см. рис.2). При пересечении волн сжатия формируется скачек уплотнения 5, имеющий бочкообразную форму. В области скачка уплотнения происходит резкое уменьшение скорости газа и соответствующий

рост давления, температуры, плотности и энтропии [5, 6, 12]. Отражение этого скачка происходит с образованием центрального скачка уплотнения 7, так называемого диска Маха, и отраженного скачка 6. Диск Маха перпендикулярен потоку и является границей определяющей переход от сверхзвуковых скоростей газового потока назад к дозвуковым. Он находится на некотором характерном расстоянии x_m , которое определяется экспериментально полученной эмпирической формулой (3.2) [13, 14]:

$$\frac{x_m}{d} = 0,67 \left(\frac{p_0}{p_b} \right)^{\frac{1}{2}}, \quad (3.2)$$

где d – диаметр сопла.

Бочкообразный скачек уплотнения 5 доходит до внешней стороны диска Маха и формирует границу внутри которой находится зона тишины, где не распространяется информация о внешних условиях. Снаружи этой границы располагается сложная зона вязкости с неизэнтропическим потоком, доходящая до внешней границы струи.

4. ПРИМЕНЕНИЕ СКИММЕРА

При сверхзвуковом извлечении из сопла молекулярного либо кластерного пучка необходимо избежать его рассеяния и серьёзного ослабления ударными волнами. Поэтому такие пучки извлекаются из зоны тишины, прежде чем газовая смесь достигнет диска Маха. Если для отбора пучка в зоне тишины поместить простую апертуру, то она будет взаимодействовать со сложным набором ударных волн, что приведет к отражению компонентов струи назад в пучок и к ее дальнейшему рассеянию. Эта проблема решается применением скиммера (см. рис. 2). Он представляет собой обрезанный конус с очень острым углом у переднего края, который позволяет проходить центральной части газовой струи, в то время как периферийная часть отражается от сторон конуса так, что оказывается далеко от оси. Подобная схема извлечения и была впервые предложена Кантовичем и Греем [1].

Оптимальная конфигурация скиммера во многом зависит от внешних условий. В идеале необходимо, чтобы все молекулы, попадающие на поверхность скиммера, отражались от него и не искажали течение у входа в отверстие. При относительно высоких внешних давлениях $p_b \geq 1$ Па, диск Маха приближается к соплу и может быть найден в пределах нескольких его диаметров. В этом случае крайне необходимо использование скиммера.

Для таких давлений в работах [15, 16] был предложен оптимальный угол скиммера порядка 50° . Это значение было выбрано как компромисс между рассеянием пучка от внешней стороны скиммера, что требует малого угла, и уменьшением рассеивания частиц на внутренней стороне скиммера, при котором необходимо увеличение внутреннего угла. Проблема рассеяния частиц внутри скиммера становится актуальной при высоких внешних давлениях из-за возникновения ударной волны на краю отверстия. При этом формируется толстый пограничный слой,

который может сильно уменьшить диаметр пучка свободно проходящего через скиммер [17].

В области с высоким вакуумом, из-за меньшего внешнего влияния газа, диск Маха формируется намного дальше от сопла. В предельном случае, при истечении газовой смеси в абсолютный вакуум, в струе не возникают ударные волны. На кромке сопла происходит разворот потока на предельно возможный угол, а на расстояниях превышающих размер выходного сечения сопла, струя приобретает характер течения с распределенной по полярному углу интенсивностью. При этом скорость газа достигает предельного значения [5]

$$v_{\max} = \sqrt{2H_0}, \quad (4.1)$$

где H_0 – полная энтальпия, а линии тока приближаются к прямым. Расширение и ускорение газа из сопла прекратится, когда газовый поток станет достаточно разреженным, для возникновения необходимого числа столкновений в пределах газовой струи. Скиммер обычно помещают в любую точку, где газовая смесь не является разреженной. А более точное его расположение относительно сопла определяется необходимым угловым расхождением пучка. В таких случаях тщательное проектирование скиммера не так необходимо и угол его разворота $\sim 30^\circ$ является оптимальным. Полуэмпирические формулы позволяющие определить местоположение скиммера можно найти в работах [16, 18].

Правильно спроектированный скиммер должен производит минимальное влияние на центральную часть струи, связанное с рассеянием и ударными волнами. И тогда при извлечении пучка частиц из сопла, рассмотрение газового потока может быть сведено к его представлению в виде свободно расширяющейся струи.

5. СВОБОДНОЕ РАСШИРЕНИЕ В ВАКУУМ

При выполнении условия (3.1) на срезе сопла будет достигнута скорость звука. В процессе истечения газовой смеси в высокий вакуум, на нее фактически не влияет остаточное давление, и струя газа будет свободно расширяться. Поскольку течение в такой струе является изоэнтропическим, то зная число Маха, можно однозначно определить остальные газодинамические величины [22]. На рис. 3 показано изменение числа Маха вдоль оси струи при ее свободном расширении в зависимости от показателя адиабаты γ и числа Маха на срезе сопла M_a .

Необходимо отметить качественное влияние основных определяющих параметров на газодинамические величины. При возрастании числа Маха M_a на срезе сопла плотность, давление и температура в некоторой точке струи, отнесенные к соответствующим параметрам газа перед соплом (параметрам торможения), уменьшаются, а отнесенные к значениям на срезе сопла – возрастают. Плотность газа растет при увеличении γ . В данной точке струи скорость газа, отнесенная к её максимальному значению, возрастает при увеличении M_a и γ . Связь между параметрами движущегося и заторможенного газа осуществляется с помощью следующих уравнений [12]:

$$\frac{T_0}{T} = 1 + \frac{\gamma - 1}{2} M^2, \quad (5.1)$$

$$\frac{p_0}{p} = \left(\frac{\rho_0}{\rho}\right)^\gamma = \left(\frac{T_0}{T}\right)^{\frac{\gamma}{\gamma-1}}, \quad (5.2)$$

где T_0 , p_0 , ρ_0 – параметры газа перед соплом (параметры торможения).

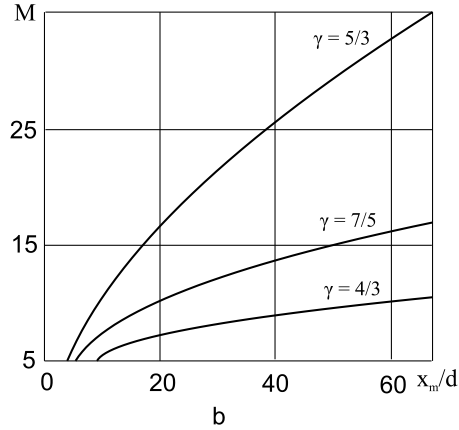
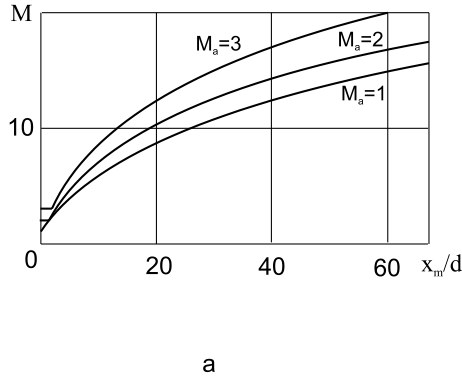


Рис. 3 – Распределение M вдоль оси струи: (а) при разном числа Маха M_a на срезе сопла ($\gamma = 7/5$); (б) для разных показателей адиабаты γ ($M_a = 3$) [7]

Следует отметить, что в реальном случае вблизи от сопла как раз в области формирования пучка эти параметры зависят как от расстояния от сопла, так и от расстояния от оси. В работах Хагены [19, 20] проведено их моделирование. Для одноатомного газа эмпирические выражения для температуры газа и плотности атомов в зависимости от расстояния от сопла будут иметь следующий вид:

$$T = 0,282T_0 \left(\frac{d}{x}\right)^{\frac{4}{3}}, \quad (5.3)$$

$$\rho = 0,15\rho_0 \left(\frac{d}{x}\right)^2, \quad (5.4)$$

где x – расстояние от сопла, а d – его диаметр, при этом должно выполняться условие: $x > 4d$.

Скорость одноатомного пучка в начале его формирования выражается как

$$v = \left(\frac{5kT_0}{m}\right)^{\frac{1}{2}}, \quad (5.5)$$

где m – масса атомов газа.

Полуэмпирическое описание поля течения из звукового сопла, предложенное Ашкенасом и Шерманом дает выражение для числа Маха M вдоль оси потока [14]:

$$M = A \left(\frac{x - x_0}{d}\right)^{\gamma-1} - \frac{1}{2} \left(\frac{\gamma+1}{\gamma-1}\right) \cdot \left(A \left(\frac{x - x_0}{d}\right)^{\gamma-1} \right)^{-1}, \quad (5.6)$$

где A и x_0 – константы, зависящие от γ и определяемые расчетным или экспериментальным путем.

Выражение (5.1) определяет отношения температуры торможения к температуре в потоке как функцию числа Маха, а выражение (5.2) – это соотношение для идеальной адиабаты.

На рис. 4 приведены основные характеристики свободно расширяющейся струи газа в зависимости от расстояния до сопла [11].

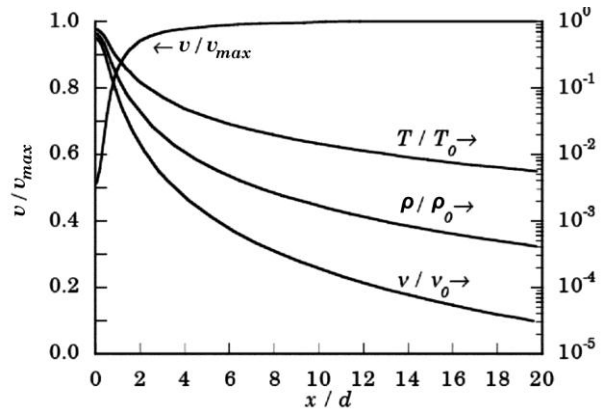


Рис. 4 – Зависимость основных параметров газового потока в свободно расширяющейся струе от расстояния x приведенного к диаметру сопла d ; T – температура, ρ_0 – плотность, v – частота парных упругих столкновений, T_0 , v_0 , ρ_0 – параметры торможения

Значение числа Маха будет расти с увеличением расстояния от сопла и отражает почти чисто радиальное расширение. Описываемые выше и им подобные соотношения, будут давать хорошее согласование с экспериментом до тех пор, пока соблюдается условие изоэнтропически сплошного течения. При переходе к свободномолекулярному неизоэнтропическому течению уменьшается частота столкновений молекул, перестает меняться температура в потоке, а вместе с ней и значение числа Маха. Окончательное «замораживание» потока наступает в момент, когда частота столкновений становится меньше скорости изменения температуры и на оси потока достигается предельное число Маха.

6. КОНДЕНСАЦИЯ И ОБРАЗОВАНИЕ КЛАСТЕРОВ В СВОБОДНО РАСШИРЯЮЩЕЙСЯ СТРУЕ

Процесс конденсации газа при свободном расширении в вакуум можно описать при помощи схематической фазовой диаграммы представленной на рис. 5. Для реальных газов кривая $p(T)$ адиабатического расширения струи начинается в некоторой точке A с параметрами p_0, T_0 , указывающей на состояние газа в источнике. Далее при свободном расширении газовой струи в точке B она пересечет кривую давления насыщенного пара $p_v(T)$. В этот момент газ становится перенасыщенным и его дальнейшее расширение происходит в области жидкой либо твердой фазы. Точка C указывает на начало конденсации, которое будет зависеть от термодинамического состояния, определяемого точкой насыщения B , а так же кинетики и временной шкалы процесса расширения, определяемых параметрами сопла, в том числе и его диаметром d и состоянием газа в источнике перед соплом в точке A .

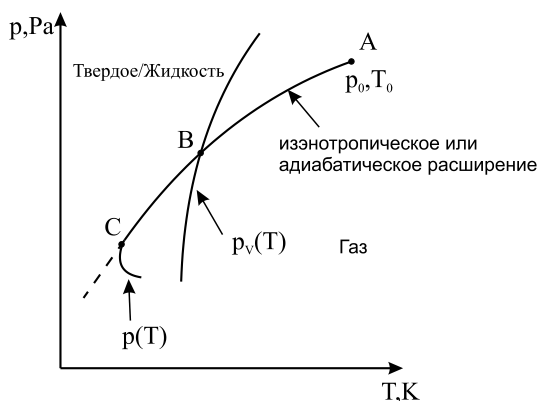


Рис. 5 – Обобщенная фазовая диаграмма в координатах давления и температуры для системы с соплом, где $p(T)$ – кривая адиабатического расширения, $p_v(T)$ – кривая давления насыщенного пара, $A(p_0, T_0)$ – состояние газа до расширения, B – точка насыщения, C – начало конденсации [21]

Не существует никакой общей теории для точного предсказания области начала конденсации, а значит и начала формирования и роста кластеров в струе расширяющегося газа. Существуют различные теоретические подходы для анализа проблемы кинетики роста кластеров при расширении пара после прохождения сопла [22-26]. На практике процессы конденсации и образования кластеров были хорошо изучены в работах Хагена и Оберта [4, 20]. Ими было показано, что формирование и рост кластеров в газовых струях происходят более эффективно при увеличении давления p_0 (или плотности n_0), уменьшении температуры T_0 и увеличении диаметра сопла d . Качественно эти зависимости вполне понятны, но не было никакой строгой закономерности показывающей кластеры какого размера соответствуют данным значениям этих параметров. В дальнейшем, исследуя корреляцию между формированием кластеров во время расширения различных газов и различными условиями расширения, Хагена получил полуэмпирический закон подобия описывающий кластерное формирование [19, 27, 28]. Был введен

некий безразмерный параметр Γ , дающий информацию о том, будут ли сформированы кластеры и с каким средним размером. Этот параметр был определен как:

$$\Gamma = n_0 \cdot d^q \cdot T_0^{(0.25q-1.5)}, \quad 0.5 < q \leq 1. \quad (6.1)$$

Приведенный параметр закона подобия включает в себя и характеристики различных газов:

$$\Gamma^* = \frac{\Gamma}{\Gamma_{ch}}, \quad (6.2)$$

где Γ_{ch} – отвечает за свойства газов и его величина изменяется при выборе определенного газа [28]. При замене плотности n_0 на давление p_0 выражение для Γ^* примет следующий вид:

$$\Gamma^* = \frac{k \cdot d^{0.85} p_0}{T_0^{2.29}}, \quad (6.3)$$

где d – диаметр отверстия сопла в микрометрах, p_0 – давление перед соплом в миллибарах, T_0 – температура газа до расширения в кельвинах и k – константа, являющаяся параметром конденсации, которая зависит от типа газа (см. табл.1) [29].

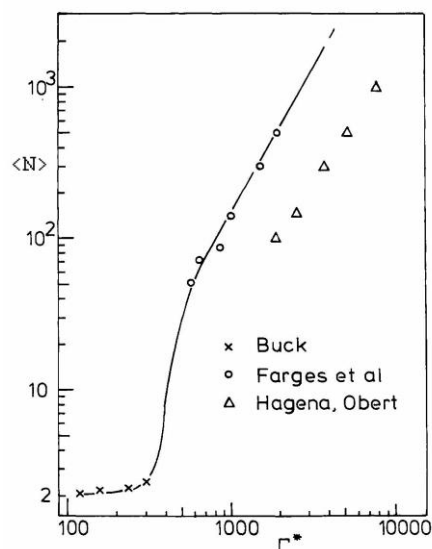


Рис. 6 – Зависимость среднего размера кластеров $\langle N \rangle$ от параметра Γ^* [30]

Экспериментальные данные показали, что для $\Gamma^* < 200$ кластеры не образуются. Диапазон значений Γ^* от 200 до 1000 свидетельствует о начале образования газодинамических кластеров инертных газов и паров металлов. При значениях $\Gamma^* > 1000$ начинается массовое кластерообразование с размерами кластеров более 100 атомов на кластер. На основе экспериментальных данных определено что для такого кластерообразования результирующий средний размер кластера $\langle N \rangle$ является функцией Γ^* . При использовании конических сопел зависимость между этими величинами для инертных газов и значений $\Gamma^* < 5000$ представлены на рис. 6 в соответствии с данными взятыми из работы [30, 31].

На основе этих данных для больших кластеров была получена следующая экстраполяция:

Таблица 1 – Значения параметра конденсации k для различных газов [29].

Газ	H ₂	D ₂	N ₂	O ₂	CO ₂	CH ₄	He	Ne	Ar	Kr	Xe
k	184	181	528	1400	3660	2360	3.85	185	1650	2890	5500

$$\langle N \rangle = 2.1 \cdot 10^{-4} \cdot \Gamma^{*1.95}. \tag{6.4}$$

Для звуковых сопел Хагена получил следующий результат [22]:

$$\langle N \rangle = 33 \left(\frac{\Gamma^*}{1000} \right)^{2.35}, \tag{6.5}$$

для $\Gamma^* > 1000$.

При этом нужно помнить, что эти соотношения дают лишь примерный диапазон размера сформированных кластеров. Фактически величина $\langle N \rangle$ будет зависеть не только от параметра Γ^* , но и методов извлечения и детектирования кластерного пучка.

При получении больших металлических кластеров для описания их структуры возможно использование модели жидкой капли, когда кластер представляется в виде капли жидкости с плотностью атомов, соответствующей жидкому металлу [32, 33]. Таким образом, для больших кластеров можно использовать известные объемные и поверхностные параметры жидких металлов. Тогда радиус кластера модели можно определить следующим образом:

$$r(n) = r_w n^{\frac{1}{3}}, \tag{6.6}$$

где n – число атомов в кластере, r_w – радиус Вигнера-Зейтца.

Радиус Вигнера-Зейтца в рамках этой модели определяется через плотность жидкого металла ρ и массу m отдельного атома:

$$r_w = \left(\frac{3m}{4\pi\rho} \right)^{\frac{1}{3}} = \left(\frac{3}{4\pi N} \right)^{\frac{1}{3}}, \tag{6.7}$$

где N – концентрация атомов в кластере.

7. ОСНОВНЫЕ ХАРАКТЕРИСТИКИ КЛАСТЕРНОГО ПУЧКА

Для использования кластерных пучков в различных экспериментах требуется описание и изучение их свойств. Одними из основных характеристик таких пучков являются их интенсивность (плотность массового потока), функция распределения кластеров по скоростям и средняя скорость потока в целом, а так же распределение кластеров по размерам в пучке. В то время как первые две характеристики поддаются теоретическому описанию и могут быть рассчитаны, определение размеров кластеров и функции распределения кластеров по размерам является достаточно сложной задачей, которая не имеет теоретической модели. Однако на основе экспериментальных данных Хагена нашел легкое и универсально применимое решение данной проблемы в виде полуэмперического закона подобия, о котором говорилось выше.

7.1 Интенсивность молекулярных и кластерных пучков

Одной из важных задач при получении и использовании газодинамических молекулярных и кластерных пучков стало предсказание и определение их интенсивности. Обычно такие пучки формируются при помощи скиммера, вырезающего центральную часть реактивной струи свободной расширяющейся из сопла в вакуум. Авторы многочисленных работ предпринимали попытки рассчитать их интенсивность. Посчитанные таким образом теоретические интенсивности, являются в несколько раз завышенными по сравнению с экспериментально измеренными. В результате чего для объяснения этих результатов в последующих работах при расчетах интенсивностей учитывались такие эффекты, как взаимодействия струи газа со скиммером и ее рассеяние на атомах остаточного газа [8, 34-43].

Для идеальной газовой струи интенсивность ее центральной части может быть определена исходя из условий изоэнтропического расширения. Так же как и для эффузионных молекулярных пучков, интенсивность центральной части газодинамической струи $I(0)$ в стерадианах и единицах времени может быть выражена через полный поток I и пик-фактор капша κ [44]:

$$I(0) = \left(\frac{\kappa}{\pi} \right) \cdot I. \tag{7.1}$$

Полный поток из источника, являющийся максимальной интенсивностью пучка, можно получить из максимального массового расхода G_{\max} :

$$I = \frac{G_{\max}}{m_0}, \tag{7.2}$$

где m_0 – масса структурной единицы (атома, молекулы, кластера).

Пик-фактор κ для эффузионного источника, а значит для свободно-молекулярного пучка выходящего из отверстия в камере с тонкой стенкой будет равен единице, а для газодинамических пучков он определяется путем численного решения гиперболических дифференциальных уравнений, которые описывают поток в звуковой плоскости [45].

Интенсивность пучка или число молекул падающих на детектор в единицу времени из эффузионного источника можно определить из следующего выражения [46]:

$$I = \frac{1}{4\pi} \frac{S_d}{l_0^2} n_0 \bar{v} S, \tag{7.3}$$

где S_d – площадь детектора, l_0 – расстояние между источником и детектором, n_0 – концентрация молекул в источнике, \bar{v} – средняя скорость молекул в источнике и S – площадь выходного отверстия.

Если p_0 – давление в источнике выразить в

мм.рт.ст., m – молекулярный вес, T – температура в K , S_d и S – площади в $см^2$, а l_0 – в см, то интенсивность эффузионного пучка выраженную в частицах за секунду можно переписать следующим образом:

$$I = 1,118 \cdot 10^{22} \frac{p_0 S_d S}{l_0^2 \sqrt{m T}}. \quad (7.4)$$

В этом выражении для интенсивности предполагается, что ослабления пучка за счет рассеяния не происходит. Если же такой эффект присутствует в какой либо части установки, то результирующую интенсивность можно умножить на соответствующий каждому случаю коэффициент ослабления [46].

В случае газодинамического соплового источника газовый расход G определяется формулой Сен-Венана-Ванцеля [47,48]:

$$G = S \sqrt{\frac{2\gamma}{\gamma-1} \frac{p_b}{\rho_0} \left[\left(\frac{p}{p_0} \right)^{\frac{2}{\gamma}} - \left(\frac{p}{p_0} \right)^{\frac{\gamma+1}{\gamma}} \right]^{\frac{1}{2}}} \quad (7.5)$$

С помощью этой формулы можно вычислить расход газа, если известны давление и плотность газа перед соплом p_0 и давление в пространстве, куда вытекает газ p_b . При уменьшении давления p_b в окружающей среде расход газа возрастает до тех пор, пока давление не станет равным критическому

$$p_* = \left(\frac{2}{\gamma+1} \right)^{\frac{\gamma}{\gamma-1}} p_0, \quad (7.6)$$

когда скорость в выходном сечении сопла станет равной скорости звука. Опыт показывает, что при дальнейшем понижении давления скорость в этом сечении остаётся равной скорости звука, а струя по выходе из сопла начинает расширяться. Таким образом, при понижении давления ниже критического, расход газа не увеличится, а останется равным

$$G_{\max} = S \left(\frac{2}{\gamma+1} \right)^{\frac{\gamma}{\gamma-1}} \sqrt{\frac{2\gamma}{\gamma+1} p_0 \rho_0}. \quad (7.7)$$

Поэтому формула (7.5) может быть применена для вычисления расхода лишь при $p_b > p_*$. При $p_b < p_*$ надо пользоваться формулой (7.7) [48]. На рис. 7 показано изменение расхода в зависимости от p_b/p_0 , определенное по формулам (7.5) и (7.7).

Таким образом, объединяя выражения (7.2) и (7.7), интенсивность газодинамического молекулярного либо кластерного пучка, полученного при расширении из сопла в вакуум можно записать следующим образом [49]:

$$I = n_0 \frac{\pi d^2}{4} v_W \cdot F(\gamma), \quad (7.8)$$

где

$$F(\gamma) = \left(\frac{2}{\gamma+1} \right)^{\frac{1}{\gamma-1}} \sqrt{\frac{\gamma}{\gamma+1}} \text{ и } v_W = \sqrt{\frac{2\kappa T_0}{m}}.$$

В таблице 2 приведены величины пик-фактора и функции $F(\gamma)$ при различных значений показателя адиабаты, необходимые для расчета интенсивности центральной части газодинамической струи $I(0)$.

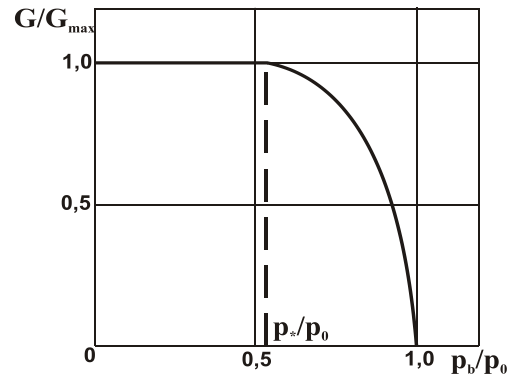


Рис. 7 – Расход газа в зависимости от отношения давлений p_b/p_0 .

Таблица 2 – Параметры интенсивности для различных значений γ [11].

γ	κ (теория)	κ (эксперимент)	$F(\gamma)$
5/3	1,98	2,0	0,513
7/5	1,38	1,47	0,478
9/7	1,11	1,18	0,282

При практических расчетах интенсивность центральной части газодинамической струи $I(0)$ в сечениях для одноатомных газов ($\gamma = 5/3$) исходя из уравнений (7.2) и (7.7) может быть записана как:

$$I(0) = \frac{3,882 \times 10^{22} p_0 S}{\sqrt{m T}}, \quad (7.9)$$

где давление p_0 выражается в торрах, площадь отверстия S в $см^2$, а температура T в кельвинах, m – молекулярная масса.

В реальных условиях остаточное давление в камере p_b , которое будет увеличиваться с увеличением p_0 , и влияние скиммера приводят к увеличению эффекта рассеяния пучка и значения интенсивности будут заметно отличаться от рассчитанных для идеального случая [50] (см. рис. 8).



Рис. 8 – Зависимость интенсивности от давления в сопле

Если λ_p – средняя длина свободного пробега частицы, проходящей через камеру длиной l с давлением p , то коэффициент ослабления будет равняться

$\exp(-l/\lambda_p)$. Для более точных расчетов необходимо учитывать зависимость λ_p от скорости частиц в пучке. Более подробное рассмотрение ослабления пучка за счет рассеяния в газе приведено в [46].

7.2 Распределение скорости в коллимированных газодинамических пучках. Максимальная скорость

Одно из преимуществ использования газодинамических источников для получения молекулярных и кластерных пучков заключается в природе распределения скорости частиц в таком коллимированном пучке. Согласно теории выдвинутой Кантровицем и Греем [1] и получившей продолжение в работе [34] распределение скорости при больших числах Маха сужается по сравнению с Максвелловским распределением классического эффузионного источника. Наиболее вероятная скорость сдвигается к более высоким значениям, постепенно приближаясь к величине, соответствующей $M = \infty$ (см. рис.9).

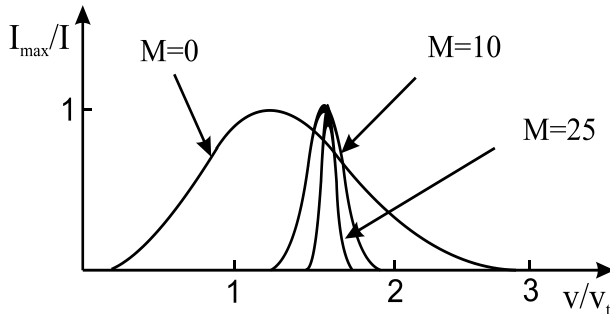


Рис. 9 – Теоретическое распределение скорости в газодинамических пучках ($\gamma = 5/3$) [37]

Предположим, что газовый поток на входе скиммера имеет трехмерное Максвелловское распределение скоростей частиц при температуре T и после попадания в скиммер частицы не подвергаются взаимодействию с его стенками и друг с другом. Тогда траектории и скорости частиц в конечном пучке на выходе из скиммера будут такими же, как и на входе.

Согласно с работой [37] распределение скорости на оси у сверхзвуковых газовых пучков в зависимости от числа Маха M и показателя адиабаты γ дается следующим выражением:

$$\frac{dI_0}{dv} = S_S n_S \frac{1}{\pi^2} \frac{1}{\pi^2} \left(\frac{\gamma M^2}{2} \right)^{\frac{3}{2}} \left(\frac{v}{v_S} \right)^3 \times \exp \left[-\frac{\gamma M^2}{2} \left(\frac{v}{v_S} - 1 \right)^2 \right], \quad (7.10)$$

где dI_0 – интенсивность пучка частиц в интервале скоростей dv , S_S – площадь отверстия у скиммера, n_S – плотность частиц на входе в скиммер, l – расстояние от входа скиммера до детектора, M – число Маха на входе в скиммер.

Для непрерывного изэнтропического потока, не имеющего возмущения у входного отверстия скиммера, значение для скорости v_S записывается следующим образом:

$$v_S = M \sqrt{\frac{\gamma k T}{m}}, \quad (7.11)$$

где m – молекулярная масса, k – постоянная Больцмана.

В более обобщенной форме выражение функции распределения скоростей для коллимированного сверхзвукового пучка можно записать так [51]:

$$f_n(v) = N_n v^n \exp \left(-\frac{(v-v_S)^2}{v_W^2} \right), \quad (7.12)$$

где $v_W = \sqrt{2kT/m}$ – наиболее вероятная скорость, N_n – нормировочный коэффициент, удовлетворяющий условию $\int f(v) dv = 1$; значение $n = 2$ соответствует функции распределения для плотности, а $n = 3$ – для интенсивности потока.

Температура T может быть записана используя выражение (5.1) и тогда величины v_S и v_t , будут зависеть от значений M , γ , m .

Одним из важных параметров, необходимых для применения молекулярных и кластерных пучков при расширении газовой смеси из сопла, является предсказание их скорости. При этом необходимо учитывать, как условия торможения, так и свойства газов и смесей. В идеализированном случае для описания скорости газа, которая приобретена им при расширении в результате разности давлений p_0 и p_b используют уравнение известное как уравнение Сен-Венана-Ванцеля выведенное в 1839 году [47]:

$$v = \sqrt{\frac{\gamma}{\gamma-1} \frac{2kT_0}{m} \left[1 - \left(\frac{p_b}{p_0} \right)^{\frac{\gamma-1}{\gamma}} \right]}. \quad (7.13)$$

При давлении p_b стремящемся к нулю, то есть при расширении газа в вакуум, эта скорость будет стремиться к максимальному значению v_{MAX} и формула (7.13) переписывается следующим образом:

$$v_{MAX} = \sqrt{\frac{\gamma}{\gamma-1} \frac{2kT_0}{m}} = v_W \sqrt{\frac{\gamma}{\gamma-1}}. \quad (7.14)$$

Расчет предельной скорости и скоростного распределения для осесимметричного пучка с использованием различных физических моделей можно найти у следующих авторов [49, 52-55].

8. СМЕШАННЫЕ ПУЧКИ

Рассмотрим случай формирования сверхзвукового молекулярного пучка при расширении из сопла бинарной газовой смеси. Если в процессе расширения выполняется условие необходимое для достаточного числа столкновений, чтобы поддержать равновесие между энергиями и импульсами у разных компонент пучка, то на входе в скиммер эти компоненты будут иметь одинаковую скорость и температуру. Фактически эти величины будут соответствовать таким же значениям, как и для однородного

газа имеющего температуру, молекулярный вес \bar{m} и показатель адиабаты $\bar{\gamma}$ равные усредненным значениям для компонент смеси в соответствии с их процентным содержанием [56, 57]. Для бинарной смеси будем иметь:

$$\bar{m} = \sum_{i=1}^2 x_i m_i = x_1 m_1 + x_2 m_2, \quad (8.1)$$

$$\bar{\gamma} = \sum_{i=1}^2 x_i \gamma_i = x_1 \gamma_1 + x_2 \gamma_2, \quad (8.2)$$

$$x_2 = 1 - x_1.$$

Таким образом, ускоряя например газовую смесь состоящую из 10% Ar с $m = 40$ и 90% He с $m = 10$ можно разогнать более тяжелую компоненту до той же максимальной скорости, которую можно получить ускоряя виртуальный пучок с $m = 40 \cdot 0,1 + 4 \cdot 0,9 = 7,6$. В этом случае скорость Ar в смеси увеличится в $\sqrt{40/7,6}$ раз (см. выражение 7.14) по сравнению с чистым Ar. Таким же образом можно уменьшить скорость легкого газа разбавляя его в тяжелом. На практике нашел применение лишь первый вариант для увеличения скорости тяжелой компоненты и соответственно ее лучшего охлаждения. Данное рассмотрение весьма приблизительно и если в бинарной смеси одна компонента во много раз тяжелей другой ($m_{heavy}/m_{light} \leq 50$ [56]) и исходное давление будет относительно низким, то в процессе столкновений тяжелые частицы не будут ускоряться достаточным образом. Происходит так называемый «сдвиг скоростей», а так же и «температурный сдвиг» по отношению к максимальным параметрам для каждой из компонент смеси. В зарубежной литературе эти явления получили названия «velocity slip», и «temperature slip» и были широко исследованы как экспериментально [58, 59], так и теоретически [60]. В своей работе [53] Миллер и Андрес вывели некие зависимости, позволяющие определять значения этих величин. Так для сдвига скорости $\Delta v/v_{MAX}$ используется следующее выражение:

$$\frac{\Delta v}{v_{MAX}} = 0,5(VSP)^{-1,07}, \quad (8.3)$$

где параметр VSP (velocity slip parameter) определяется массами компонент пучка, параметрами струи и характером взаимодействия между частицами.

Сдвиг значений температуры для двухкомпонентной газовой смеси определяется отдельно для тяжелой (H -heavy) и легкой (L -light) компонент из выражений [11]:

$$\frac{T_L}{T_0} = 7,0 \cdot (TSP_L)^{-1,064}, \quad (8.4)$$

$$\frac{T_H}{T_0} = 8,0 \cdot (TSP_H)^{-1,112}, \quad (8.5)$$

где TSP_H (temperature slip parameter) – параметр сдвига температуры для i -той компоненты, который

так же определяется характером столкновений между частицами и параметрами струи состоящей из различных компонент находящихся в определенном соотношении.

Следует отметить, что при низком давлении но все еще непрерывном режиме в смешанных пучках будет наблюдаться эффект массовой селекции по оси пучка. Из-за сильных радиальных градиентов, существующих в начальной части свободно расширяющейся струи ($x \approx d$), легкая составляющая пучка имеет тенденцию к дрейфу в область с более низким давлением, оставляя на оси струи в области с более высоким давлением тяжелую компоненту [61]. Теоретический анализ явления был предложен в работе [62] и подтвержден на практике в [63]. Кроме того, наличие осевого градиента давления будет приводить к тому, что при ускорении тяжелые частицы будут распространяться с задержкой, по отношению к легким. В условиях проведения большинства экспериментов со свободными струями, когда $p_0 d > 2$ Торр см эти эффекты будут не значительны, а последний будет наблюдаться в пределах сравнимых с радиусом сопла и при низких плотностях потока [56].

Эффекты происходящие в смешанных молекулярных пучках, нашли широкое применение в газокластерных источниках, позволяя существенным образом охлаждать пары рабочего вещества в потоке буферного газа.

9. ВЛИЯНИЕ ФОРМЫ СОПЛА И ДРУГИХ УСЛОВИЙ НА ПРОЦЕСС КОНДЕНСАЦИИ

При формировании кластерного пучка в процессе расширения газовой смеси из сопловых источников, одним из важных моментов является задача подбора формы сопла, которая обеспечивает получение кластеров определенного размера.

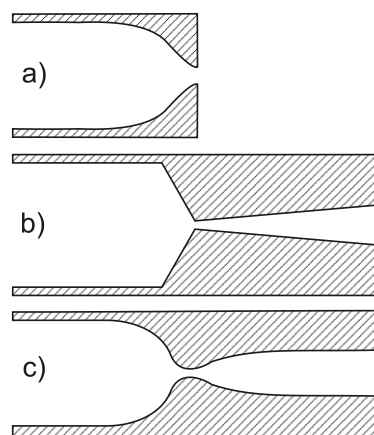


Рис. 10 – Сопла с различной геометрией: (а) звуковое; (б) коническое; (с) сопло Лавая

Одними из первых проблему влияния формы сопла на условия торможения, соответствующие определенной стадии конденсации, а значит и процесс кластерообразования, исследовали экспериментально Хагена и Оберт в работе [4], где было проведено обобщение результатов по конденсации различных одноатомных газов на основании модели

«соответственных струй» [64]. Эта модель основана на термодинамическом подобии газов в соответственных состояниях [65] и отражает газокинетическое подобие различных струй, которые вытекают из звуковых сопел с подобной геометрией при одинаковых числах Кнудсена. Модель реализуется и при различных типах сопел (см. рис. 10), однако при этом диаметр d критического сечения сопла заменяется значением эквивалентного диаметра сопла d_{eq} . Так для сопел конической формы величина d должна быть заменена на диаметр «эквивалентного конического сопла» $d_{eq}^{conical}$, которое дается следующим выражением:

$$d_{eq}^{conical} = \frac{k(\gamma) \cdot d}{\operatorname{tg}(\theta)}, \quad (9.1)$$

где d – диаметр критического сечения конического сопла, θ – полуугол раскрытия сопла, $k(\gamma)$ – постоянная, зависящая от типа газа [64, 66, 67]. Для $\gamma = 5/3$ значение $k(\gamma) = 0,73$, а для $\gamma = 7/5$ значение $k(\gamma) = 0,86$.

Для понимания механизма конденсации необходимо рассмотреть процессы, которые при этом происходят в сопле. В большинстве случаев при наличии гомогенной конденсации пара во время истечения газовой струи возникает сравнительно тонкий слой, где происходит интенсивное образование зародышей жидкой фазы. В так называемом скачке конденсации осуществляется переход пара из метастабильного переохлажденного состояния в состояние, близкое к равновесному. За скачком конденсации течение приобретает равновесные параметры, где новые зародыши не образуются, а происходит лишь их рост.

Таким образом, от количества зародышей в скачке конденсации будут зависеть параметры кластерного пучка. При одних и тех же условиях большое количество зародышей приведет к росту кластеров небольших размеров, а уменьшение их числа позволит появиться кластерам больших размеров. Если такие термодинамические параметры как плотность, тепловая скорость и пересыщение будут оставаться неизменными в заданном интервале dT , то и средний размер кластеров останется постоянным. Хагена [4] экспериментально показал, что средний размер кластеров остается фактически неизменным при увеличении начальной температуры T_0 , если одновременно будет возрастать давление p_0 согласно изоэнтропическому соотношению

$$p_0 / T_0^{\frac{\gamma}{\gamma-1}} = \operatorname{const}, \quad (9.2)$$

что подтвердило предсказания модели «соответственных струй». В той же модели показано, что уменьшение критического диаметра сопла d может быть скомпенсировано увеличением давления перед соплом p_0 следующим образом:

$$p_0 d^q = \operatorname{const} \text{ при } T_0 = \operatorname{const}, \quad (9.3)$$

где $0 < q < 1$. Из экспериментальных данных следует, что для кластеров одинакового размера $q = 0,8$ для Ar и $q = 0,6$ для CO_2 .

На рис. 10 представлены три конфигурации аксиально-симметричных сопел, которые наиболее часто применяются в газокластерных источниках и были изучены в работах Хагена и соавторов. Согласно их данным конические сопла и сопла Лавала примерно одинаково влияют на процесс кластерообразования и более эффективны при формировании интенсивных кластерных пучков, а также кластеров больших размеров по сравнению со звуковыми соплами. При этом, для получения кластерных пучков с одинаковым размером частиц, для звуковых сопел необходимы более высокие начальные давления, чем для конических [4]. Так же, из «закона подобия» Хагена следует (см. уравнения (6.3), (6.5), (9.1)), что среди конических сопел с одним и тем же критическим диаметром, сопла с меньшим выходным углом могут приводить кластеры большего размера. С увеличением длины сопла увеличивается время нахождения частиц в области высокого давления на выходе из сопла и соответственно вероятность образования кластеров, что делает эффективным использование капилляров при формировании кластеров [68]. Следует отметить, что в основу «закона подобия» Хагена легли экспериментальные данные, полученные при относительно низком начальном давлении газа. В последствии, в результате экспериментальных исследований было продемонстрировано, что этот закон применим для оценки среднего размера получаемых кластеров и при высоком давлении в случае со звуковыми соплами [29, 69, 70]. В тех случаях, когда для получения больших кластеров используются конические сопла и высокое входное давление, средний размер кластеров имеет более слабую зависимость от давления на входе сопла, чем следует из «закона подобия» [71]. Особенно это проявляется при малых выходных углах [72], что может быть связано с более сильным влиянием пограничного слоя. Изучение кластерообразования при планарном расширении газа через щелевые сопла проводилось в работах [73, 74]. Измерение релеевского рассеяния на кластерах аргона показало более крутую зависимость сигнала от давления для планарного расширения газа, чем для осесимметричного. На рис. 11 приведена зависимость относительного среднего размера кластеров от давления на входе сопла для сопел различной геометрии [74].

Из-за трудностей, обусловленных определением точного размера кластеров при использовании только релеевского рассеяния, авторами проведена оценка зависимости для относительного размера кластеров от давления. Исследования показали эффективность использования планарного расширения и особенно конических щелевых сопел для получения кластеров больших размеров.

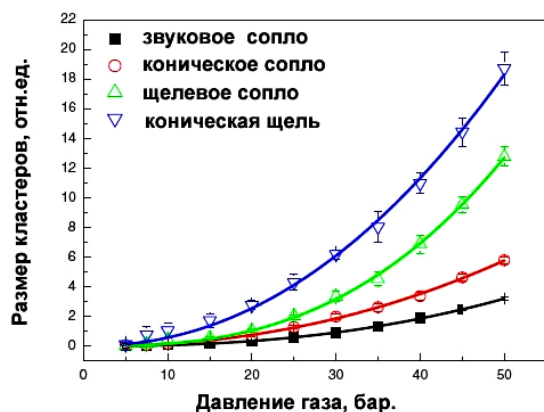


Рис. 11 – Зависимость среднего размера кластеров от давления для различных типов сопел [74]

В результате экспериментальных исследований влияния выходного угла для конических сопел на размер кластеров [72] в основном было получено соответствие результатов с законом подобия Хагены. Однако было также найдено, что с увеличением давления на входе сопел с меньшими выходными углами наблюдаются отклонения от «закона подобия» при определении среднего размера кластера, а так же ослабевают зависимости размеров кластеров от давления.

Существует большое количество работ по исследованию проблемы кластерообразования в соплах при помощи численных методов [68, 75 – 77].

В качестве примера математического моделирования кластерообразования в соплах можно привести работу [78]. Авторы применили описание двухфазного мелкодисперсного потока, каковым является течение газа с кластерами, с помощью усредненных параметров всей среды (плотности, скорости и удельной внутренней энергии) и моментов функции распределения кластеров по их радиусам. Результаты квазиодномерных расчетов некоторых конических сопел показали, что значение таких параметров, как средний радиус и среднее число атомов в кластере, возрастают при увеличении длины сопла. Был сделан вывод, что для получения крупных кластеров сопло должно расширяться как можно медленнее (по крайней мере, в области скачка конденсации), а для получения максимальной концентрации кластеров, наоборот, нужны быстрорасширяющиеся сопла.

10. АЭРОДИНАМИЧЕСКАЯ ФОКУСИРОВКА И СЕПАРАЦИЯ КЛАСТЕРНОГО ПУЧКА

Применение сверхзвукового расширения, для получения пучка заряженных либо нейтральных частиц, дает возможность использования аэродинамических эффектов, связанных с инерционными свойствами наночастиц, при формировании и транспортировке таких пучков. Одним из первых идею использования инерционных эффектов в газовой струе для массовой сепарации выдвинул Дирак в сороковые годы прошлого столетия [79]. Спустя десятилетие Беккер и сотрудники экспериментально наблюдали подобный эффект при свободном расширении сверхзвуковой струи в источнике молекулярного

пучка [80], а последующая его работа была связана с обогащением урана в аэродинамическом каскаде специально спрофилированных сопел [81]. Сложность и двусмысленность первых экспериментов не дала возможности широко применить эффекты аэродинамической сепарации наночастиц [82, 83]. В дальнейшем эти эффекты были использованы для фокусировки частиц в расходящемся кластерном пучке и получения высокоинтенсивных молекулярных пучков [84, 85, 86].

Основной принцип аэродинамической сепарации и фокусировки частиц заключается в следующем. Если на пути газовой струи, содержащей наночастицы, будут находиться препятствия, вынуждая ее делать резкие повороты на острые углы, то частицы будут следовать за газовым потоком в зависимости от их инерции. Параметр St , позволяющий предсказать поведение частиц в струе газа при огибании препятствий, называется числом Стокса. Это некий критерий подобия, показывающий соотношение между кинетической энергией частиц и энергией её взаимодействия с газовым потоком.

Число Стокса определяется как соотношение длины свободного пробега частицы τ на среднюю начальную скорость струи U к радиусу струи $D_j/2$:

$$St = \frac{\tau \cdot U}{D_j / 2} = \frac{\rho_p d_p^2 U C_c}{9 \eta D_j}, \quad (10.1)$$

где ρ_p и d_p – плотность и диаметр частиц соответственно, η – динамическая скорость газа и C_c – корректирующий фактор [87].

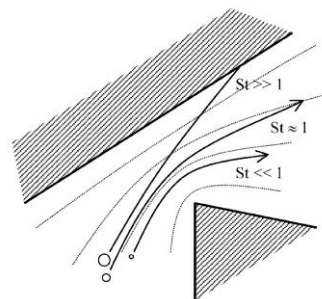


Рис. 12 – Основной принцип аэродинамической сепарации и фокусировки [88]

Если инерция частиц велика ($St \gg 1$), то они не будут способны следовать вслед за линиями газового потока и, как следствие, произойдет их столкновение с поверхностью препятствия (см.рис.12). Движение маленьких частиц имеющих меньшую инерцию ($St \ll 1$) будет происходить по линиям газового потока. Траектории частиц имеющих некий промежуточный размер будут слабо расходиться с линиями газового потока. Этот эффект и используется для концентрации частиц в определенных точках поля течения [88].

Вдохновленные исследованиями [89, 90], где была показана возможность фокусировки частиц в газовом потоке при его прохождении через отверстие в тонкой пластине, Луи с соавторами [91, 92] создали систему так называемых аэродинамических



Рис. 13 – Траектории частиц с размером 15 нм в аэродинамической системе линз [97, 98]

фокусирующих линз, состоящую из последовательно расширяющихся и сужающихся частей (рис. 13). Эта система располагалась перед соплом и позволяла изменять пространственное распределение частиц, как до сопла, так и при последующем свободном расширении газового потока. Аэродинамические фокусирующие линзы получили широкое применение для получения коллимированных пучков, содержащих частицы определённых размеров [93-98].

Уменьшить угловое распределение кластерного пучка, полученного в результате расширения через сопло, возможно при использовании капилляров в качестве сопла [99]. При прохождении через капилляр частицы будут асимптотически сходиться к фокусу внутри него и впоследствии незначительно расходиться, в связи с тем, что капиллярные стенки будут ограничивать линии газового потока.

Один из вариантов конструкции аэродинамической фокусирующей системы был предложен в работе [100] (см. рис. 14). Перед входом в капиллярное сопло была помещена пластина. В результате газовый поток вынужден сделать два поворота под прямым углом прежде чем достигнуть входного отверстия. Изменение расстояния между пластиной и капилляром позволяет осуществлять сепарацию частиц необходимого размера.

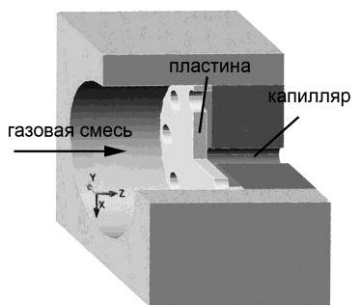


Рис. 14 – Схематическое изображение аэродинамического фокусирующего устройства [100]

В данном случае фокусировке могут быть подвержены кластеры, находящиеся на большем расстоянии от оси системы и имеющие более широкий диапазон размеров по сравнению с вышеописанной аэродинамической системой. В последующих публикациях было проведено моделирование работы такого аэродинамического сопла [101], исследование различных эксплуатационных режимов [102] и его усовершенствование [103].

Альтернативной возможностью для сепарации заряженных кластеров в газовом потоке может быть использование дифференциального анализатора подвижности (DMA), который является полосовым фильтром наночастиц с размерами в пределах от 1 нм до 1 мкм в диаметре [104]. Определение размеров частиц в газовом потоке основано на их подвижности в электрическом поле. Конструкция прибора (рис. 15) состоит из цилиндрического конденсатора к обкладкам которого приложено высокое напряжение.

Смесь наночастиц и газа носителя поступает внутрь с одной стороны конденсатора через внешнее кольцо между электродами и выходит с другой стороны. Двигаясь вдоль обкладок конденсатора, заряженные нанокластеры будут смещаться к внутреннему электроду. Их траектории будут зависеть от скорости газового потока и электрической подвижности заряженных частиц, которая обратно пропорциональна их размерам. Частицы, имеющие одинаковую подвижность, а значит и размер, выйдут с газовым потоком через небольшую щель в основании внутреннего электрода. Изменение потенциала на обкладках конденсатора приведет к изменению размера частиц в выделенном газовом потоке. Особенно широкое применение такие устройства получили при разделении аэрозольных частиц.

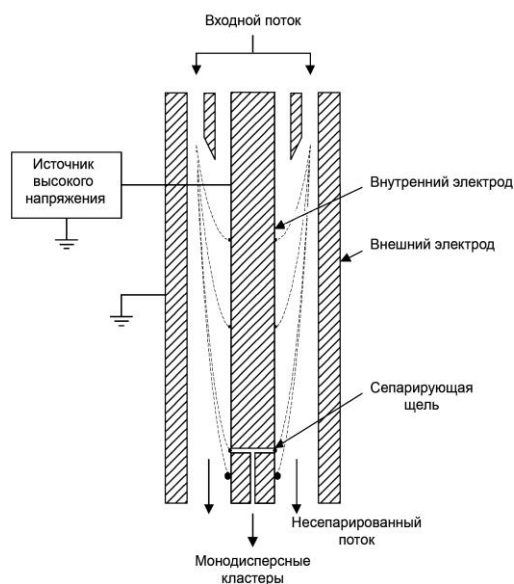


Рис. 15 – Принцип работы дифференциального анализатора подвижности

11. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Использование кластеров в качестве строительного материала для создания нанообъектов обусловлено их исключительными свойствами. Это связано с тем, что у многих кластеров увеличено соотношение площади поверхности к объему, по сравнению с традиционными объектами, что приводит к возникновению новых квантово-механических эффектов и дает возможность синтезировать новые материалы. Особая роль при получении кластеров принадлежит источникам, которые позволяют получать кластерные пучки с различным составом и свойствами. Одним из важных компонентов большинства таких кластерных источников является аэродинамическое сопло, позволяющее получать интенсивные

пучки кластерных частиц и влияющее на такие параметры, как величина кластеров их температура и расхождение. Вторая часть обзора о кластерных источниках посвящена генерации и формированию кластерных пучков в сопловых источниках. В краткой форме рассмотрены процессы происходящие при извлечении из сопла молекулярных либо кластерных пучков, приведены основные газодинамические параметры влияющие на процессы конденсации, возникновения кластеров и дальнейшего формирования пучков частиц. При генерации кластеров, в том числе и в сопловых источниках, происходит множество процессов, понимание которых позволит управлять кластерообразованием и в конечном счете получать пучки кластеров с заданными параметрами.

Cluster Beams Sources. Part 2. The Formation of Cluster Beams in Nozzle Sources

A.Ju. Karpenko, V.A. Baturin

Institute of Applied Physics, National Academy of Sciences of Ukraine, 58, Petropavlovskaya St., Sumy 40030, Ukraine

The article briefly examines the processes occurring during the formation of cluster beams in sources of clusters, using the expansion of the gas mixture through a nozzle. The basic parameters of the gas cluster flow at the outlet nozzle, leading to the formation of clusters are analyzed. Some aspects of the formation of cluster beams from aerodynamic flows are discussed.

Keywords: Cluster, Cluster ions, Cluster beams sources, Molecular beams, Nozzle, Cluster formation, Expansion in vacuum.

Джерела кластерного пучка.

Частина 2. Формування кластерних пучків у соплових джерелах

А.Ю. Карпенко, В.А. Батурін

Інститут прикладної фізики НАН України, вул. Петропавлівська, 58, 40030, Суми, Україна

У статті коротко розглянуті процеси, які відбуваються при формуванні кластерних пучків у джерелах кластерів, що використовують у роботі розширення газової суміші через сопло. Проаналізовано основні параметри газокластерного потоку на виході сопла, що приводять до утворення кластерів. Обговорюються деякі аспекти формування кластерних пучків з аеродинамічних потоків.

Ключові слова: Кластери, Кластерні іони, Джерело кластерного пучка, Молекулярні пучки, Сопло, Кластероутворення, Розширення у вакуум.

СПИСОК ЛІТЕРАТУРИ

1. A. Kantromtz, I. Grey, *Rev. Sci. Instrum.* **22**, 328 (1951).
2. E.W. Becker, K. Bier, W. Henkes, *Z. Phys.* **146**, 333 (1956)
3. E.W. Becker, *Z. Phys. D* **3**, 101 (1986).
4. O.F. Hagena, W. Obert, *J. Chem. Phys.* **56**, 1793 (1972).
5. Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц, *Теоретическая физика: Гидродинамика* **6** (Москва: Наука: 1986).
6. В.П. Стулов, *Лекции по газовой динамике: Учебник* (Москва: Физматлит: 2004).
7. В.С. Авдудевский, Э.А. Ашаратов, А.В. Иванов, У.Г. Пирумов, *Сверхзвуковые неизобарические струи газа* (Москва: Машиностроение: 1985).
8. *Atomic and Molecular Beam Methods* **1** (Ed. G. Scoles) (New York: Oxford University Press: 1988).
9. V.K. Bier, B. Schmidt, *Z. Angew. Phys.* **13**, 493 (1961).
10. V.K. Bier, *Z. Angew. Phys.* **14**, 658 (1962).
11. David R. Miller, *Atomic and Molecular Beam Methods*, 14-53 (edited by Giacinto Scoles) (New York: Oxford University press: 1988).
12. Г.Н. Абрамович, *Прикладная газовая динамика: Ч.1* (Москва: Наука: 1991)
13. S. Crist, P.M. Sherman, D.R. Glass, *AIAA J.* **4**, 68 (1966).
14. H. Ashkenas, F.S. Sherman, *4th International Symposium on Rarefield Gas Dynamics*, 85 (Ed. J.H. de Leeuw) (New York: Academic Press: 1965).
15. R. Campargue, *Rev. Sci. Instrum.* **35**, 111 (1964).
16. R. Campargue, *J. Chem. Phys.* **88**, 4466 (1984).
17. J.B. Anderson, R.P. Andres, J.B. Fenn, *Advances in Chemical Physics: Molecular Beams* **10**, 275 (Ed. J. Ross) (Interscience: 1966).
18. H.C.W. Beijerinck, R.J.F. Gerwen, E.R.T. Kerstel, J.F.M. Martens, E.J.W. Vliembergen, M.R.T. Smits, G.H. Kaashoek, *Chem. Phys.* **96**, 153 (1985).

19. O.F. Hagena, *Cluster Beams from Nozzle Sources: Molecular Beams and Low Density Gas Dynamics*, 93 (Ed. P.P. Wegener, M. Decker) (New York: 1974).
20. O.F. Hagena, *Surf. Sci.* **106**, 101 (1981).
21. O.F. Hagena, *Rev. Sci. Instrum.* **63**, 2374 (1992).
22. R. Wiel, *Z. Phys. D* **27**, 89 (1993).
23. S. Valkkealahti, M. Manninen, *Phys. Rev. B* **50**, 17564 (1994).
24. J. Khatouri, M. Mostafavi, J. Ridard, J. Amblard J. Belloni, *Z. Phys. D* **34** No1, 47 (1995).
25. B.K. Rao, B.M. Smirnov, *Phys. Scripta* **56**, 439 (1997).
26. А.А. Востриков, Н.В. Гайский, Ю. С.Куснер, *ПМТФ* **1**, 28 (1978).
27. O.F. Hagena, *Phys. Fluids* **17**, 894 (1974).
28. O.F. Hagena, *Z. Phys. D* **4**, 291 (1987).
29. R.A. Smith, T. Ditmire, J.W.G. Tisch, *Rev. Sci. Instrum.* **69**, 3798 (1998).
30. J. Wörmer, V. Guzielski, J. Stapelfeldt, T. Möller, *Chem. Phys. Lett.* **159**, 321 (1989).
31. J. Wörmer, V. Guzielski, J. Stapelfeldt, G. Zimmerer, T. Möller, *Phys. Scripta* **41**, 490 (1990).
32. B.M. Smirnov, *Clusters and Small Particles in Gases and Plasmas* (New York: Springer, 2000).
33. Б.Н. Смирнов, *УФН* **170**, 495 (2000) (B.M. Smirnov, *Phys. Usp.* **43**, 453 (2000)).
34. H.M. Parker, A.R. Kuhlthau, R. Zapata, J.E. Scott, *Rarefied gas dynamics* (Ed. F.M. Devienne) (New York: Pergamon Press: 1960).
35. J.B. Anderson, R.P. Andres, J.B. Fenn, *Advances in atomic and molecular physics* (Ed. D.R. Bates, I. Estermann) (New York: Academic Press: 1965).
36. J.B. French, *Molecular beams for rarefied gasdynamic research: AGARDograph* (Paris: NATO: 1966).
37. J.B. Anderson, J.B. Fenn, *Phys. Fluids* **8**, 780 (1965).
38. O.F. Hagena, H.S. Morton, *Rarefied gas dynamics 2*, 1369 (Ed. C.L. Brundin) (New York: Academic Press: 1967).
39. E.L. Knuth, N.M. Kuluva, J.P. Callian, *Entropie* **18**, 38 (1967).
40. R.L. Le Roy, T.R. Gover, J.M. Deckers *Can. J. Chemistry* **48**, 927 (1970).
41. L. Pedemonte, G. Bracco, R. Tatarek, *Phys. Rev. A* **59**, 3084 (1999).
42. P.R. Brooks D.R. Herschbach, *Rev. Sci. Instr.* **35**, 1528 (1964).
43. D. Egorov, T. Lahaye, W. Schöllkopf, B. Friedrich, J.M. Doyle, *Phys. Rev. A* **66**, 043401 (2002).
44. H. Pauly, *Atom, Molecule, and Cluster Beams I: Basic Theory, Production and Detection of Thermal Energy Beams* (Germany: Springer-Verlag: 2000).
45. H. Beijerinck, N. Verster, *Physica C* **111**, 327 (1981).
46. Н.Рамзей, *Молекулярные пучки* (Москва: ИИЛ: 1960).
47. B. Saint-Venant, L. Wantzel, *Memoire et experiences sur l'ecoulement de l'air determine par des differences de pressions considerables: Journal de l'ecole Royale Polytechnique XXVII, XVI* (Paris: 1839).
48. С.А. Христианович, *Прикладная газовая динамика*. (Москва: ЦАГИ:1948).
49. H. Pauly, *Atom, Molecule, and Cluster Beams I: Basic Theory, Production and Detection of Thermal Energy Beams* (Germany: Springer-Verlag: 2000).
50. M.A. Herman H. Sitter, *Molecular Beam Epitaxy, fundamental and current status* (Berlin: Springer: 1989).
51. H. Haberland, U. Buck, M. Tolle, *Rev. Sci. Instrum.* **56**, 1712 (1985).
52. E.L. Knuth, S.S. Fisher, *J. Chem. Phys.* **48**, 1674 (1968).
53. D.R. Miller., R.P. Andres, *Proc. 6th Int. Symp. on Rarefied Gas Dynamics* **2**,1385 (New York: 1969).
54. L. Pedemonte, G. Bracco, R. Tatarek, *Phys. Rev. A* **59**, 3084 (1999).
55. R.L. Leroy, T.R. Gover, *Can. J. Chemistry* **48**, 1743 (1970).
56. G. Sanna, G. Tomassetti, *Introduction To Molecular Beams Gas Dynamics* (London: Imperial College Press: 2005).
57. J.B. Anderson, *Molecular Beams from Nozzle Sources: Molecular Beams and Low Density Gasdynamics*, 1 (Ed. P.P Wegener) (New York: Marcel Dekker: 1974).
58. O. Hagena, W. Hcnkes, *Z. Naturforsch A* **15**, 851 (1960).
59. N. Abuaf, J.B. Anderson, K.P. Andres, J.B. Fenn, D.G. Marsden, *Science* **155**, 997 (1967).
60. J.B. Anderson, *Entropie* **18**, 33 (1967).
61. J.B. Anderson, *Am. Inst. Chem. Eng.* **13**, 1188 (1967).
62. F.S. Sherman, *Phys. Fluids* **8**, 773 (1965).
63. D.E. Rothe, *Phys. Fluids* **9**, 1643 (1966).
64. O.F. Hagena, *6th International Symposium on Rarefied gas dynamics*, 1465 (Ed. L. Trilling, H.Y. Wachman) (New York: Academic Press: 1968).
65. Д.Гришфельд, Ч. Кетрис, Р. Берд, *Молекулярная теория газов и жидкостей*. (Москва: ИЛ.: 1961).
66. J. Wörmer, V. Guzielski, J. Stapelfeldt, T. Möller, *Chem. Phys. Lett.* **159**, 321 (1989).
67. J. Wörmer, V. Guzielski, J. Stapelfeldt, G. Zimmerer, T. Möller, *Phys. Scripta* **40**, 490 (1990).
68. H.R. Murphy, D.R. Miller, *J. Phys. Chem.* **88**, 4474 (1984).
69. A.M. Bush, A.J. Bell, J.G. Frey, J.-M. Mestdagh, *J. Phys. Chem. A* **102**, 6457 (1998).
70. F.M. DeArmond, J. Suelzer, M.F. Masters, *J. Appl. Phys.* **103**, 093509 (2008).
71. F. Dorchies, F. Blasco, T. Caillaud, J. Stevefelt, C. Stenz, A. S. Boldarev and V.A. Gasilov, *Phys. Rev. A* **68**, 023201 (2003).
72. G. Chen, B. Kim, B. Ahn, D.E. Kim, *J. Appl. Phys.* **108**, 064329 (2010).
73. F.M. DeArmond, J. Suelzer, M.F. Masters, *J. Appl. Phys.* **103**, 093509 (2008).
74. G. Chen, B. Kim, B. Ahn, D.E. Kim, *J. Appl. Phys.* **106**, 053507 (2009).
75. D.R. Miller, M.A. Fineman, H.R. Murphy, *13th Intern. Symp. Rarefied Gas Dynamics* (Ed. O.M. Belotserkovskii et al.) (New York: Plenum Press: 1985).
76. R.C. Dykhuizen, M.F. Smith, *J. Therm. Spray Technol.* **7**, 205 (1998).
77. M. Grujicic, W.S. DeRosset, D. Helfritch *J. Engineering Manufacture B* **217**, 1603 (2003).
78. А.С. Болдарев, В.А. Гасилов, А.Я. Фаенов, *ЖТФ* **74** №4, 10 (2004) (A.S. Boldarev, V.A. Gasilov, A.Ya. Faenov, *Tech. Phys.* **49**, 338 (2004)).
79. P.A.M. Dirac, *Oxford Report #36 UKAEA*, BR 694, 2 (Harwell: 1946)
80. E.W Becker, K.Z Bier, *Z. Naturforsch* **9a**, 975 (1954).
81. E.W. Becker, *Uranium enrichment: Topics in applied physics* **35**, 245 (Ed. S. Villani) (Berlin: Springer: 1979).
82. V.H. Reis, J.B. Fenn, *J. Chem. Phys.* **39**, 3240 (1963).
83. P.C. Waterman, S.A. Stern, *J. Chem. Phys.* **31**, 405 (1959).
84. W.K. Murphy, G.W. Sears, *J. Appl. Phys.* **85**, 1986 (1964).
85. G. W. Israel, S.K. Friedlander, *J. Colloid Interface Sci.* **24**, 330 (1967).
86. В.Е. Dahnke, H. Flachsbar, *J. Aerosol Sci.* **3**, 345 (1972).
87. W.C. Hinds, *Aerosol Technology 2nd Edition* (New York: John Wiley & Sons: 1999).
88. P. Piseri, H. Vahedi-Tafreshi, P. Milani, *Curr. Opinion Solid State Mater. Sci.* **8**, 195 (2004).
89. J. Fernandez de la Mora, P. Riesco-Chueca, *J. Fluid Mech.* **195**, 1 (1988).
90. J. Fernandez de la Mora, J. Rosell-Llompарт, *J. Chem. Phys.* **91**, 2603 (1989).
91. P. Liu, P.J. Ziemann, D.B. Kittelson, P.H. McMurry, *Aerosol Sci. Tech.* **22**, 293 (1995).
92. P. Liu, P.J. Ziemann, D.B. Kittelson, P.H. McMurry, *Aerosol Sci. Tech.* **22**, 314 (1995)
93. X. Wang, P.H. McMurry, *Int. J. Mass Spectr.* **258**, 30 (2006).
94. X. Zhang, K.A. Smith, D.R. Worsnop, J.L. Jimenez, J.T. Jayne, C.E. Kolb, *Aerosol Sci. Tech.* **38**, 619 (2004).
95. K.S. Lee, S.W. Cho, D. Lee, *J. Aerosol Sci.* **39**, 287 (2008).
96. A. Nikbakht, O. Abouali, G. Ahmadi, *Sci. Iran.* **14**, 263 (2007).

97. F.Di Fonzo, *Appl. Phys. Lett.* **77**, 910 (2000).
98. A. Gidwani, *Studies of Flow and Particle Transport in Hypersonic Plasma Particle Deposition and Aerodynamic Focusing: PhD Thesis*, 55455 (Minneapolis: Department of Mechanical Engineering, University of Minnesota: 2003).
99. R.V. Mallina, A.S. Wexler and M.V. Johnston, *J. Aerosol Sci.* **30**, 719 (1999).
100. P. Piseri, A. Podesta, E. Barborini, P. Milani, *Rev. Sci. Instrum.* **72**, 2261 (2001).
101. H. Vahedi Tafreshi, G. Benedek, P. Piseri, S. Vinati, E. Barborini, P. Milani, *Eur. Phys. J. Appl. Phys.* **16**, 149 (2001).
102. H. Vahedi Tafreshi, G. Benedek, P. Piseri, S. Vinati, E. Barborini, P. Milani, *Aerosol Sci. Tech.* **36**, 593 (2002).
103. P. Middha, A.S. Wexler, *Aerosol. Sci. Tech.* **37**, 907 (2003).
104. P. Intra, N. Tippayawong, *J. Sci. Tech.* **30** No2, 243 (2008).