

УПРАВЛЕНИЕ ПРОЦЕССОМ ОБРАЗОВАНИЯ КЛАСТЕРОВ В МОЛЕКУЛЯРНЫХ ПУЧКАХ С ПОМОЩЬЮ ИК-ЛАЗЕРОВ

В. М. Апатин, В. Н. Лохман, Г. Н. Макаров, Н.-Д. Д. Огурок, Е. А. Рябов*

*Институт спектроскопии Российской академии наук
108840, Троицк, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 31 января 2017 г.

Представлены результаты экспериментальных исследований по управлению процессом образования кластеров в молекулярных пучках с помощью ИК-лазеров. Исследования проводились с молекулярным газом CF_3I , разбавленным аргоном или ксеноном. В экспериментах использовался CO_2 -лазер непрерывного действия. Метод управления процессом образования кластеров основан на резонансном колебательном возбуждении молекул или кластеров излучением ИК-лазера в области выхода из сопла. В зависимости от расстояния зоны возбуждения частиц от «среза» сопла облучение пучка приводит либо к подавлению кластеризации резонансно-возбужденных молекул (при облучении пучка вблизи выхода из сопла, где происходит формирование кластеров), либо к диссоциации небольших кластеров (при облучении пучка вдали от сопла, где формирование кластеров находится на стадии роста). Процессы подавления кластеризации молекул и диссоциации кластеров в пучках изучались на основе измерений и анализа интегральных интенсивностей ионных пиков кластерных фрагментов с помощью времяпролетного масс-спектрометра. Изучены зависимости эффективности подавления кластеризации молекул и диссоциации кластеров от параметров возбуждающего лазерного излучения, геометрии облучения пучка, а также от параметров газа над соплом и конструкции сопла. Показано, что эффективность подавления кластеризации молекул и диссоциации кластеров существенно зависят от мощности возбуждающего лазерного излучения, конструкции сопла, а также от расстояния зоны облучения от среза сопла. Установлены параметры, при которых реализуется наиболее эффективное управление процессами подавления кластеризации молекул и диссоциации кластеров в пучках.

DOI: 10.7868/S0044451017100017

1. ВВЕДЕНИЕ

Молекулярные и кластерные пучки [1–5] широко используются в научных исследованиях для изучения свойств как самих кластеров, так и большого числа физико-химических процессов с их участием, включая их фрагментацию лазерным излучением или при столкновении с поверхностью, процессов адсорбции и десорбции и других элементарных процессов на поверхности, а также для нанесения микро- и наноструктур, получения тонких пленок и новых материалов [1–14]. В последнее время активно исследуются внутрикластерные физико-химические процессы в молекулярных вандер-ваальсовых кластерах, их фрагментация при резонансном возбуждении интенсивными лазерными ИК-импульсами входящих в состав кластеров

молекул [10, 15–25], а также селективные процессы с участием кластерных и молекулярных пучков [26–29].

В связи с широким использованием молекулярных и кластерных пучков в различных областях исследований актуальной проблемой является разработка методов управления составом и содержанием молекулярно-кластерных пучков, в том числе процессами подавления кластеризации и образования кластеров в пучках. Во всех методах получения кластеров, в том числе в газодинамических струях, генерируется распределение кластеров по размерам [1–5]. Это обусловлено тем, что процесс образования кластеров имеет статистический характер. Полученное распределение является лог-нормальным [1, 30–32], т. е. гауссовым в системе координат с логарифмической осью абсцисс. Полуширина асимметричного распределения примерно равна среднему размеру кластеров. Вместе с тем в экспериментах по исследованию свойств кластеров и процессов с

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

их участием желательно знать состав и содержание кластерных пучков, а также уметь управлять указанными параметрами. Недавно нами был предложен метод и приведены результаты определения состава и содержания нейтральных импульсных молекулярных кластерных пучков по ионным сигналам кластерных фрагментов [33]. В работах [34–39] была показана возможность использования индуцированных CO_2 -лазером селективных процессов подавления кластеризации молекул SF_6 и диссоциации кластеров этих молекул в газодинамических струях для разделения изотопов серы (см. также обзор [29] и ссылки в нем).

В данной работе нами представлены результаты исследований по управлению процессами подавления кластеризации и диссоциации кластеров, выполненных с молекулами CF_3I . Выбор этой молекулы и ее кластеров $(\text{CF}_3\text{I})_n$ (n — число молекул в кластере) обусловлен несколькими причинами. Молекулы CF_3I хорошо возбуждаются излучением CO_2 -лазера, легко формируют кластеры, и процесс их кластеризации достаточно хорошо изучен [15–17]. Эти молекулы, наряду с молекулами SF_6 , являются наиболее хорошо изученными также в контексте спектроскопии [40] и селективной многофотонной ИК-диссоциации [41], в том числе в молекулярных пучках [42]. Кластеры $(\text{CF}_3\text{I})_n$ относительно легко детектируются благодаря наличию в их масс-спектре молекулярных ионов I_2^+ , которые формируются в процессе многофотонного возбуждения кластеров лазерным УФ-излучением [15–17, 20, 22].

Основной целью данных исследований является поиск условий, при которых резонансное колебательное возбуждение молекул и кластеров излучением ИК-лазера существенно влияет на процесс зарождения кластеров и/или их рост при газодинамическом расширении CF_3I , и определение оптимальных условий, при которых имеет место эффективное подавление кластеризации молекул и диссоциации кластеров.

2. ЭКСПЕРИМЕНТ И МЕТОД

2.1. Экспериментальная установка

Экспериментальная установка и метод исследования подробно описаны в работах [15, 16, 22]. Здесь мы опишем их кратко. Установка (рис. 1) включает высоковакуумную камеру с импульсным источником молекулярно-кластерного пучка, фотоионизационный времяпролетный масс-спектрометр и перестраиваемый по частоте CO_2 -лазер непрерывно-

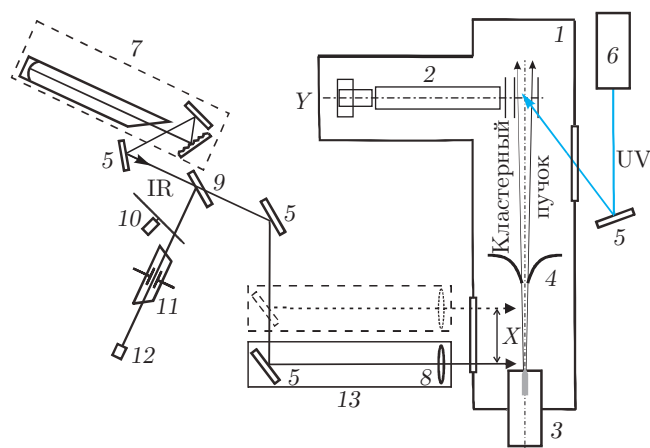


Рис. 1. Схема экспериментальной установки: 1 — вакуумная камера; 2 — масс-спектрометр; 3 — импульсное сопло; 4 — скиммер; 5 — плоское зеркало; 6 — источник УФ-излучения; 7 — непрерывный CO_2 -лазер; 8 — линза; 9 — делительная пластина; 10 — механический модулятор; 11 — оптико-акустический приемник; 12 — приемник лазерного излучения; 13 — подвижной оптический столик с поворотным зеркалом и линзой

го действия. Камеры источника молекулярного пучка и времяпролетного масс-спектрометра откачивались до давления соответственно $\leq 10^{-5}$ Торр и 10^{-7} Торр турбомолекулярными насосами. В установку входят также импульсные УФ- и ИК-лазеры, система синхронизации импульсов и система сбора и обработки данных.

CO_2 -лазер (с составом рабочей смеси $\text{CO}_2:\text{N}_2:\text{Xe}:\text{He}=1:1.5:0.25:10$ при суммарном давлении около 18 Торр) имел мощность излучения до 15–18 Вт. Длина волны излучения лазера перестраивалась во всех четырех ветвях генерации на 12–14 линиях в каждой ветви в диапазоне от 9.2 мкм до 10.7 мкм (в частотном диапазоне 1087–933 cm^{-1}). Частота излучения определялась с помощью оптико-акустической кюветы 11 по известным линиям поглощения аммиака, а мощность излучения контролировалась с помощью датчика 12 (рис. 1). Лазерный пучок имел гауссово распределение в поперечном сечении. Излучение лазера направлялось с помощью зеркала 5 и линзы 8 в область импульсного сопла. Эти два элемента были смонтированы на одной платформе 13, которая могла плавно перемещаться вдоль оси молекулярно-кластерного пучка. Этим обеспечивалась возможность облучения любой заданной области на оси пучка в пространстве перед скиммером. Излучение фокусировалось линзой из NaCl с фокусным расстоянием $f = 200$ мм. Диаметр перетяжки лазерного пучка

в фокусе линзы составлял $D_{IR} = 0.43$ мм, а длина перетяжки (по критерию Рэлея) $l = 8-9$ мм. С учетом потерь излучения при транспортировке его мощность в зоне облучения пучка достигала 10–11 Вт (интенсивность 69–76 кВт/см²). Для плавного изменения интенсивности излучения использовался френелевский ослабитель на основе двух пластин из NaCl.

Молекулярно-кластерный пучок CF₃I генерировался в камере источника путем газодинамического охлаждения смеси газа исследуемых молекул с газом-носителем (аргоном или ксеноном) в результате сверхзвукового расширения через импульсное сопло. В экспериментах использовались два типа импульсных сопел — коммерческое сопло типа General Valve с диаметром выходного отверстия 0.8 мм и с выходным конусом и разработанное нами сопло с диаметром выходного отверстия 0.22 мм. В обоих случаях длительность токового импульса открывания сопла варьировалась в диапазоне 0.2–2.0 мс. Давление газа над соплом могло изменяться в диапазоне $P_0 = 0-5$ атм. С помощью скиммера (типа Veam Dynamics, Model 1, диаметр отверстия 0.66 мм), расположенного на расстоянии 38.5 мм от сопла, из центральной части сверхзвукового потока, создаваемого этим соплом, вырезался молекулярный/кластерный пучок. Сформированный таким способом пучок попадал в камеру времяпролетного масс-спектрометра. На расстоянии 96.5 мм от входного отверстия скиммера этот пучок пересекался с взаимно-перпендикулярными осями масс-спектрометра и пучка ионизирующей молекулы излучения УФ-лазера (область перестройки длины волны $\lambda_{UV} \approx 215-237$ нм). Такое совместное использование многофотонной УФ-ионизации и масс-спектрометрического детектирования обеспечивает возможность диагностики кластерных пучков, а также исследование лазерной ИК- и УФ-фрагментации кластеров [15, 16, 20, 22–24].

УФ-фотоионизация и фрагментация кластеров производились второй гармоникой излучения лазера на красителе (область длин волн генерации $\lambda_{dye} \approx 430-474$ нм, ширина линии $\Delta\nu_{dye} \approx 0.5$ см⁻¹) с накачкой эксимерным XeCl-лазером. Вторая гармоника генерировалась с помощью кристалла ВВО. Образующиеся ионы детектировались вторичным электронным умножителем (ВЭУ-2). УФ-излучение лазера фокусировалось в зону пересечения молекулярно-кластерного пучка с осью масс-спектрометра линзой ($f = 12$ см) [22]. Диаметр пятна лазерного излучения в фокусе линзы (на уровне $1/e$) составлял примерно 0.13 мм. Длительность лазерного

импульса была 7–10 нс по полувысоте, а плотность энергии в области перетяжки не превышала величину $\Phi_{UV} \approx 2$ Дж/см². Ионный сигнал с ВЭУ, а также значения энергии импульсов УФ-излучения регистрировались на цифровом осциллографе и направлялись в компьютер для накопления и последующей обработки.

Изменение задержки между моментом открывания сопла и импульсом УФ-излучения позволяло регистрировать времяпролетный спектр $S(t, Y = 0)$ пучка [15, 16, 20], т.е. зависимость концентрации частиц в пучке от времени при прохождении ими области детектирования (Y — координата вдоль оси масс-спектрометра). Установка позволяла измерять пространственно-временные характеристики кластерного пучка и продуктов фрагментации в зависимости от параметров импульса лазерного УФ-излучения и условий формирования пучка (температуры T_0 , состава и давления газа P_0 над соплом), т.е. $S(t, X; T_0, P_0; E_{UV}, \lambda_{UV}; m/z)$, где m и z — масса иона и кратность ионизации, а X — координата вдоль оси кластерного пучка [15, 16]. Под сигналом с данными параметрами понимается величина, пропорциональная заряду ионного тока в области выбранного массового пика: $S(m/z) = \int_{\Delta t} j(\tau) d\tau$.

2.2. Метод

Идея подхода к лазерному управлению кластеризацией состоит в предварительном, до начала процесса кластеризации, колебательном возбуждении молекул, в том числе заданного сорта, при газодинамическом расширении на выходе из сопла. В результате при последующей конденсации запасенная колебательная энергия предотвращает (подавляет) кластеризацию возбужденных молекул. Кроме того, при соответствующем выборе места облучения частиц на оси струи в пространстве перед скиммером (см. рис. 1) можно осуществить диссоциацию малых кластеров — димеров, что также можно использовать для управления процессом кластеризации молекул. В этом случае требуется обеспечить (например, выбором подходящих условий расширения газа) преимущественное образование димеров и отсутствие кластеров большего размера. Экспериментальное подтверждение возможности реализации рассмотренных подходов для разделения изотопов серы было осуществлено в работах [34–39]. Есть основания полагать (см. обзоры [29, 43]), что именно эти подходы лежат в основе активно разрабатываемой в настоящее время технологии SILEX

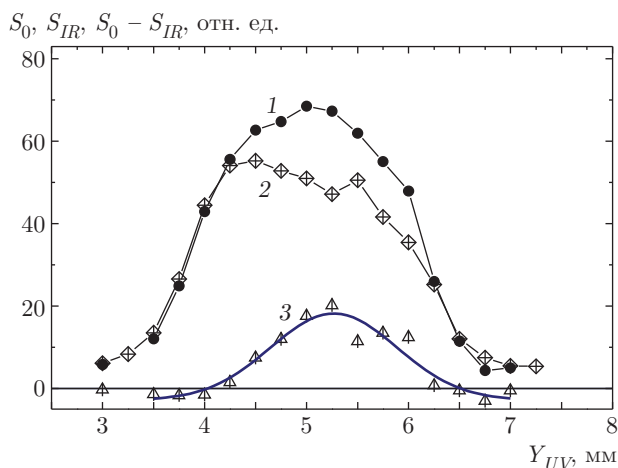


Рис. 2. Поперечное сканирование кластерного пучка лазерным УФ-излучением в области регистрации времяпролетным масс-спектрометром: 1 — распределение сигнала $S_0(Y_{UV})$ без облучения пучка ИК-лазером; 2 — распределение сигнала $S_{IR}(Y_{UV})$ при облучении пучка ИК-излучением на расстоянии $X = 21$ мм от сопла. Линия генерации CO_2 -лазера 9R(14) (частота 1074.65 см^{-1}), мощность 10.2 Вт (интенсивность 70.3 кВт/см^2); 3 — разностный сигнал $S_0(Y_{UV}) - S_{IR}(Y_{UV})$. Давление и состав газа над соплом: $P_0(\text{CF}_3\text{I} + \text{Ar}; 1 : 15) = 1.1 \text{ атм}$

(Separation of Isotopes by Laser EXcitation) молекулярного лазерного разделения изотопов [44–47].

Молекулярно-кластерный пучок облучался CO_2 -лазером в области между соплом и скиммером перпендикулярно оси пучка (см. рис. 1). При этом положение лазерного пучка можно было сканировать вдоль и поперек этой оси. Для нахождения оптимального сигнала и измерения концентрации кластеров в пучке (как без облучения пучка, так и при его облучении лазером) излучение сканировалось вдоль оси Y (см. рис. 1). Далее, сканированием УФ-излучения также вдоль оси Y (вдоль оси масс-спектрометра) по величине измеряемого сигнала от кластеров (сигнала иона I_2^+) находилась облучаемая CO_2 -лазером область кластерного пучка в зоне детектирования (рис. 2).

Молекулы CF_3I (как свободные, так и в составе кластеров $(\text{CF}_3\text{I})_n$) легко возбуждаются резонансным излучением CO_2 -лазера [22, 48] при воздействии на колебание ν_1 (1075 см^{-1} [40]). В работе [15] было показано, что молекулы CF_3I легко образуют кластеры при сверхзвуковом расширении газа из импульсного сопла. Были измерены основные характеристики образующегося пучка кластеров $(\text{CF}_3\text{I})_n$ и показано, что под действием импульса излучения CO_2 -лазера происходит диссоциация

этих кластеров. Характерной особенностью многофотонной УФ-ионизации кластеров $(\text{CF}_3\text{I})_n$ является образование молекулярного иона I_2^+ в результате внутрикластерных реакций. Продуктом фрагментации иона I_2^+ является атомарный ион I^+ . На основе этого эффекта в работе [15] была разработана техника детектирования кластеров $(\text{CF}_3\text{I})_n$ по сигналу иона I_2^+ . В работе [16] были найдены условия детектирования с помощью многофотонной УФ-ионизации и самих молекул CF_3I . Тем самым стало возможным изучать также ИК-фрагментацию кластеров $(\text{CF}_3\text{I})_n$ [22–24].

Величина кластерного сигнала и его поведение зависят как от условий расширения газа на выходе из сопла (состава и давления газа над соплом, конструкции и режима работы сопла), так и от параметров лазерного ИК-излучения (длины волны, мощности излучения, сечения лазерного пучка в зоне взаимодействия). В экспериментах измерялись интенсивности ионных пиков I_2^+ ($m = 254$ ат. ед. массы) и I^+ ($m = 127$ ат. ед. массы), которые являются мерой содержания кластеров $(\text{CF}_3\text{I})_n$ в пучках. Уменьшение величины ионных сигналов I_2^+ и I^+ в зависимости от условий облучения частиц пучка ИК-лазером отражает факт подавления кластеризации молекул CF_3I и/или диссоциации кластеров $(\text{CF}_3\text{I})_n$ ИК-излучением.

3. РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

В процессе кластеризации газа при расширении на выходе из сопла можно выделить несколько стадий (рис. 3), протекающих преимущественно в разных областях струи.

Область 1 вблизи среза сопла и на расстояниях в несколько калибров (диаметров сопла) от среза сопла характеризуется наиболее быстрым охлаждением поступательных и внутренних степеней свободы молекул с переходом энергии в кинетическую энергию направленного движения потока, а среды — в пересыщенное состояние, что приводит к образованию зародышевых кластеров.

Столкновительная область 2 расширяющейся струи, которая характеризуется продолжающимся газодинамическим охлаждением с одной стороны и ростом кластеров в струе с неким нагревом системы за счет энергии конденсации с другой стороны.

Область 3 после границы «замораживания» — переход к бесстолкновительному движению частиц и стабилизации кластерной системы.

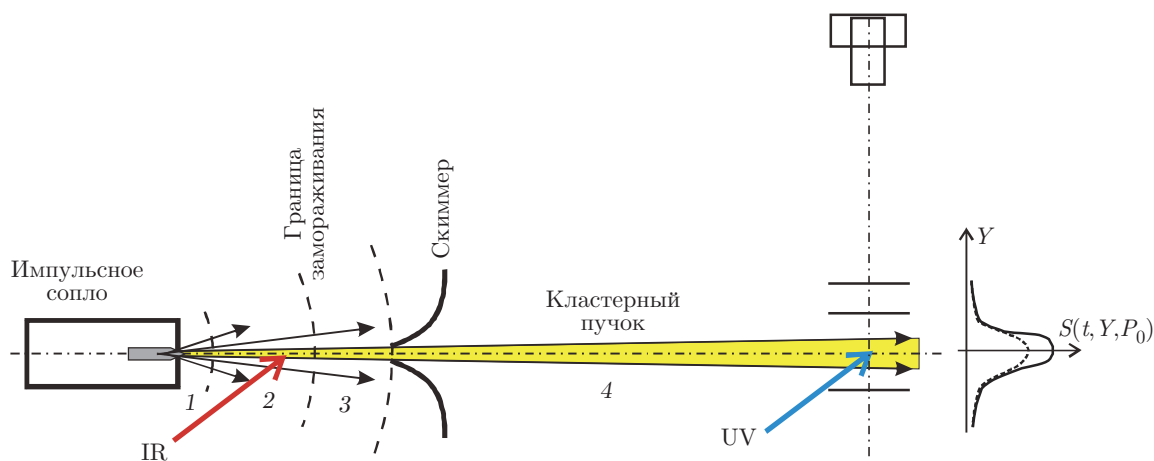


Рис. 3. Формирование кластерного пучка в условиях импульсной струи

Пространство 4 между скиммером и областью регистрации во времяпролетном масс-спектрометре представляет собой свободный пролет кластерного пучка, сформированного скиммером из центральной части струи. Свойства пучка в области регистрации определяются геометрической расходимостью, составом и скоростным распределением частиц на момент прохождения скиммера.

Для исследования влияния резонансного ИК-возбуждения молекул струи на формирование кластерного пучка на различных этапах кластеризации необходимо облучать частицы в соответствующих областях струи на траектории потока, формирующего кластерный пучок, и регистрировать изменения параметров пучка в зоне детектирования. Уменьшение сигнала кластерной составляющей может происходить по нескольким причинам.

Область 1. Если в этой области за счет ИК-возбуждения молекул обеспечить локальное увеличение температуры, препятствующее образованию зародышей, то это в идеале может предотвратить дальнейшую кластеризацию молекул. В случае сильного разбавления молекул инертным газом, когда вероятность столкновений молекул между собой мала, можно реализовать селективное подавление кластеризации возбуждаемых («целевых») молекул.

Область 2. В случае облучения частиц лазерным ИК-излучением в этой области будет иметь место колебательный нагрев молекул, а также кластеров, образовавшихся в струе к этому моменту. При этом возможна частичная фрагментация кластеров. Заметим, что нагрев частиц происходит на фоне конкурирующего газодинамического охлажде-

ния частиц (особенно при наличии газа-носителя), а также некоторого дальнейшего изменения кластерного состава струи (роста кластеров, эволюции распределения по размерам).

Область 3. При облучении частиц в этой области, где нет столкновений, действие ИК-излучения в основном сводится к нагреву кластеров и их фрагментации, что отражается в соответствующем уменьшении сигнала кластерной составляющей пучка.

Из-за ограниченной мощности лазерного излучения (не более 11 Вт) большое внимание в экспериментах было уделено выбору оптимального размера лазерного пучка в зоне взаимодействия, особенно выбору размера поперечного сечения пучка. При большой апертуре пучка плотность энергии лазера для эффективного возбуждения молекул не достаточна. При жесткой фокусировке лазерного пучка из-за небольшого размера области возбуждения велика вероятность поперечного «заплывания» этой области к моменту прихода пучка в зону регистрации. Используемая в экспериментах линза ($f = 200$ мм) давала перетяжку диаметром $D_{IR} = 0.43$ мм, что при используемой геометрии соизмеримо с размерами сопла ($D_{Nz} = 0.8$ мм) и скиммера ($D_{Sk} = 0.66$ мм). Параметры каустики определялись экспериментально, методом измерения пропускания лазерного излучения через отверстие в экране для нескольких расстояний от линзы до экрана. В случае гауссова пучка диаметром R_e , $I(r) = I_0 \exp(-r^2/R_e^2)$, для пропускания через отверстие диаметром $2a$ можно получить $T(a, R_e) = 1 - \exp(-a^2/R_e^2)$. Тогда, зная экспериментально измеренное пропускание $T(Z_i)$ для ряда положений линзы (Z_i — координаты вдоль оси лазерного пуч-

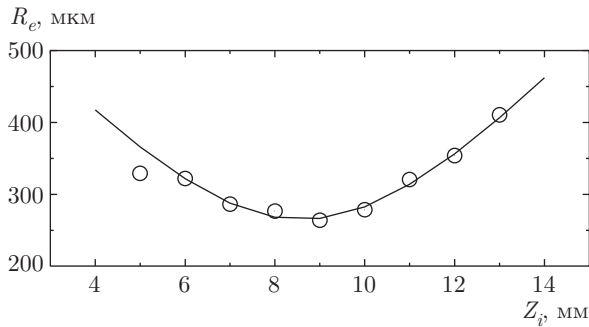


Рис. 4. Характерный вид каустики лазерного пучка, полученный в одной из серий экспериментов ($2a = 186$ мкм, $R_0 = 265$ мкм): точки — эксперимент; кривая — модель

ка), можно получить значения соответствующих радиусов пучка (на уровне $1/e$):

$$R_e(Z_i) = a \sqrt{1 / \ln \left(\frac{1}{1 - T(Z_i)} \right)}. \quad (1)$$

Полученный таким образом вид каустики в области перетяжки показан на рис. 4. Длина перетяжки (по критерию Рэлея) составляла $l = 8-9$ мм.

Одним из важных параметров в экспериментах такого типа является доза облучения — плотность энергии Φ_{IR} , которой облучаются частицы, пересекающие лазерный пучок. Она зависит от мощности W лазерного излучения, сечения πR^2 лазерного пучка и времени пролета частиц через лазерный пучок ($\Delta t = 2R/U$, где U — скорость направленного движения). Для центральной части облучаемого объема она равна

$$\Phi_{IR} \left[\frac{\text{Дж}}{\text{см}^2} \right] = \frac{W \cdot 2R}{\pi R^2 U} = \frac{2W}{\pi R U}. \quad (2)$$

При характерном значении мощности ИК-излучения $W = 8$ Вт интенсивность лазерного излучения в зоне возбуждения пучка равнялась 55.2 кВт/см², а плотность энергии лазера составляла $\Phi_{IR} = 0.0055$ Дж/см². Если для оценки использовать сечение линейного поглощения молекул CF_3I в области линии $9R(14)$ генерации CO_2 -лазера, равное $\sigma_{\text{CF}_3\text{I}} = 5.7 \cdot 10^{-18}$ см² [40], то значение поглощенной энергии в расчете на одну молекулу будет составлять $\sigma\Phi_{IR} = 0.192$ эВ. Это не слишком много, если принять во внимание, что для отрыва одной молекулы CF_3I от кластера $(\text{CF}_3\text{I})_n$ (с числом молекул $n \approx 50$) необходимо примерно 0.35 эВ [19].

Отметим, что знание плотности энергии облучения необходимо, например, для сравнения результатов, полученных при диссоциации кластеров непрерывным и импульсным лазерным ИК-излучением.

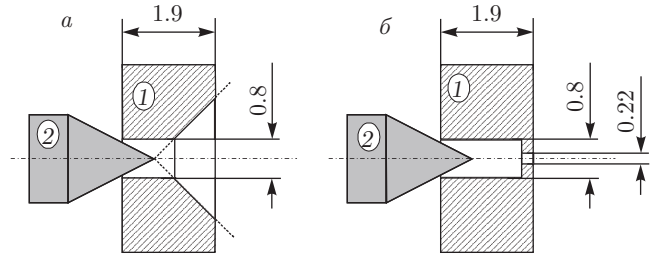


Рис. 5. Фрагменты используемых импульсных сопел в области клапана: а — коммерческое сопло; б — сопло новой конструкции; 1 — тело сопла; 2 — керн клапана. Размеры показаны в миллиметрах

Такое сравнение позволяет лучше понять природу фрагментации кластеров (см. ниже рис. 9). Недавно в работе [24] нами было показано, что результаты по диссоциации кластеров $(\text{CF}_3\text{I})_n$ резонансным излучением непрерывного и импульсного (с длительностью импульса около 100 нс) CO_2 -лазеров хорошо совпадают между собой, что позволяет рассматривать фрагментацию кластеров ИК-излучением в указанной временной шкале (более 10^{-7} с) как квазистационарный процесс последовательного испарения молекул из кластера.

3.1. Результаты исследований со стандартным соплом

В экспериментах со стандартным коммерческим соплом типа General Valve нами было установлено, что местоположение области начала кластеризации молекул зависит от состава смеси и степени разбавления молекул газом-носителем, а также от суммарного давления газа над соплом. Показано, что при сравнительно сильном разбавлении молекул в газе-носителе и/или высоком суммарном давлении газа над соплом область кластеризации молекул находится не на выходе из сопла, а внутри канала сопла в самом узком месте расширения газа, в области между телом сопла и подвижным керном (рис. 5а). Поэтому влиять лазерным излучением на процесс начала кластеризации молекул в этом случае невозможно. Это следует из рис. 6, где приведены результаты исследований воздействия ИК-излучения на частицы в предскиммерном пространстве. В частности, при сканировании молекулярно-кластерной струи в поперечном направлении излучением непрерывного CO_2 -лазера было обнаружено, что при пересечении лазерным пучком траектории частиц, проходящих впоследствии через скиммер в область регистрации пучка, в кластерных сигналах

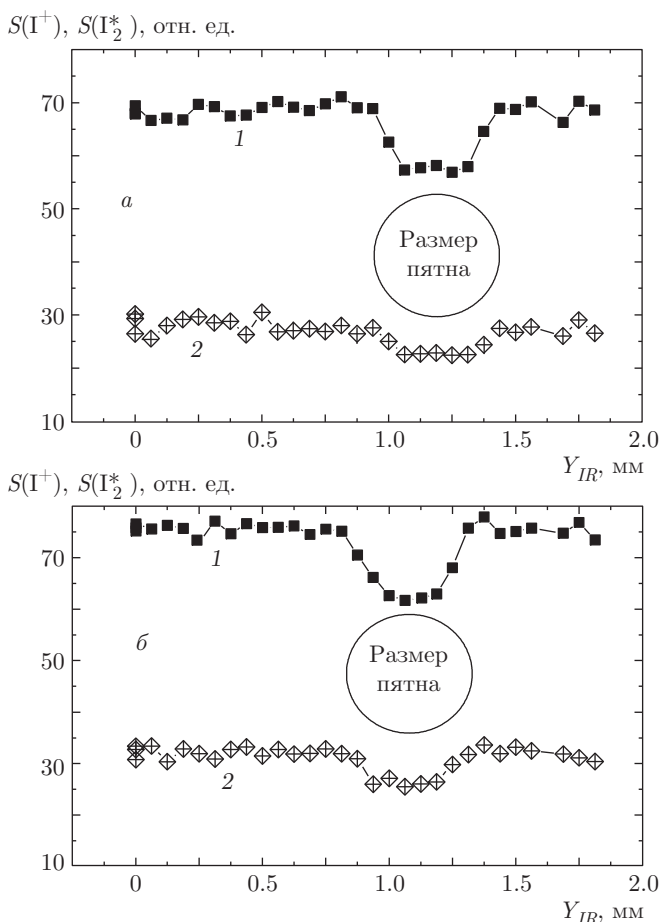


Рис. 6. Изменение ионных сигналов $S(I^+)$ (кривые 1) и $S(I_2^+)$ (кривые 2) при поперечном сканировании сверхзвуковой струи ИК-излучением непрерывного CO_2 -лазера: *a* — зондирование в области близкой к соплу ($X = 0.25$ мм); *б* — зондирование в области вдаль от сопла ($X = 21$ мм). Линия генерации CO_2 -лазера $9R(14)$ (частота 1074.65 см^{-1}), мощность излучения около 10 Вт (интенсивность 69 кВт/см^2). Давление и состав газа над соплом: $P_0(CF_3I + Ar; 1 : 15) = 1.1\text{ атм}$

лах $S(I^+)$ и $S(I_2^+)$ наблюдается хорошо выраженный провал (до 20–25%) с характерным размером, близким к диаметру лазерного пучка. Приведенные результаты показывают, что индуцированный лазером сигнал одинаков как при возбуждении пучка сразу на выходе из сопла (на расстоянии $X = 0.25$ мм), так и на значительном расстоянии от сопла ($X = 21$ мм), когда процесс кластеризации молекул уже полностью завершен. Эти данные, несомненно, подтверждают факт кластеризации молекул внутри канала сопла. Индуцируемое лазером и наблюдаемое нами уменьшение сигнала от кластеров $(CF_3I)_n$ связано

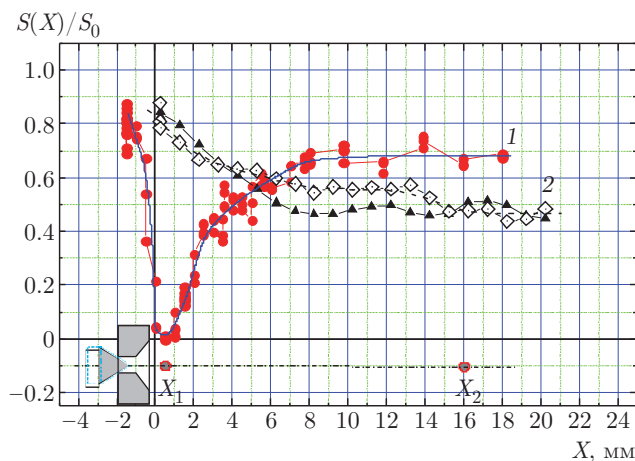


Рис. 7. (В цвете онлайн) Изменение относительной величины ионных кластерных сигналов I_2^+ (\bullet, \diamond) и I^+ (\blacktriangle) в зависимости от расстояния между срезом сопла (см. рис. 5а) и зоной ИК-облучения в случае использования смесей с $P_0(CF_3I + Xe; 1 : 2) = 0.5\text{ атм}$ (кривая 1) и $P_0(CF_3I + Ar; 1 : 15) = 0.52\text{ атм}$ (кривые 2). Нормировка проведена на сигнал S_0 в отсутствие ИК-излучения. Линия генерации CO_2 -лазера $9R(14)$ (частота 1074.65 см^{-1}) в обоих случаях, мощность излучения 4 Вт (интенсивность 27.6 кВт/см^2) (кривая 1) и 7.8 Вт (интенсивность 53.8 кВт/см^2) (кривые 2)

не с предотвращением кластеризации молекул, а с диссоциацией кластеров лазерным излучением.

Лишь при использовании небольших суммарных давлений газа над соплом (0.3–0.5 атм) и/или несильном разбавлении молекулярного газа CF_3I атомарным газом-носителем (Ar, Xe) (в соотношении примерно 1 : 2 или 1 : 3) происходил «переход» области кластеризации молекул из сопла наружу, в зону расширения газа на выходе из сопла. Это связано с тем, что при указанных выше параметрах газа над соплом значительно ухудшаются условия для кластеризации молекул, что приводит к затягиванию процесса кластеризации во времени и пространстве. В частности, увеличивается доля некластеризованных молекул вблизи среза сопла, и это отражается на величине кластерной составляющей сигнала в зависимости от места ИК-облучения частиц между срезом сопла и скиммером. При этом можно проследить за влиянием ИК-возбуждения на различных этапах формирования кластеров. Результаты таких экспериментов, выполненных со смесями разного состава и разной степени разбавления молекул газом-носителем, приведены на рис. 7.

Кривой 1 на рис. 7 показано поведение кластерного ионного сигнала I_2^+ в зависимости от расстояния зоны возбуждения частиц от среза сопла в случае использования смеси с $P_0(\text{CF}_3\text{I} + \text{Xe}; 1 : 2) = 0.5$ атм. Поведение ионного сигнала I^+ в данном случае было аналогично поведению сигнала I_2^+ . В приведенной зависимости 1 процессы подавления кластеризации молекул CF_3I и диссоциации сформировавшихся кластеров $(\text{CF}_3\text{I})_n$ явно отражаются в поведении кластерных ионных сигналов I_2^+ и I^+ в зависимости от расстояния зоны возбуждения частиц от сопла. Резкое уменьшение кластерного сигнала I_2^+ на небольших расстояниях от сопла ($X \leq 1$ мм) связано с подавлением кластеризации свободных молекул. С увеличением расстояния X зоны возбуждения частиц от сопла (на расстояниях $X \approx 1-7$ мм) происходят как процессы подавления кластеризации молекул, так и диссоциации сформировавшихся кластеров. При еще больших расстояниях от сопла ($X \geq 7$ мм) имеет место диссоциация кластеров. Отметим, что в данном случае область кластеризации молекул полностью находилась вне канала сопла, и нами наблюдалось практически полное (100-процентное) подавление кластеризации молекул. Вынос области кластеризации молекул из канала сопла наружу происходил в результате более медленного охлаждения газа при выходе из сопла из-за использования нами слаборазбавленной смеси молекул CF_3I с более тяжелым газом-носителем Хе при небольшом давлении, когда процессы кластеризации молекул растягивались во времени и в пространстве.

Кривыми 2 на рис. 7 показаны зависимости ионных сигналов I_2^+ и I^+ от расстояния зоны возбуждения частиц от среза сопла в случае использования смеси с $P_0(\text{CF}_3\text{I} + \text{Ar}; 1 : 15) = 0.52$ атм. В данном случае характер поведения кластерных сигналов I_2^+ и I^+ существенно отличается от характера поведения сигнала, показанного кривой 1, а также от поведения сигналов, показанных на рис. 6, когда использовалась аналогичная смесь, но при большем суммарном давлении. В экспериментах при давлении $P_0(\text{CF}_3\text{I} + \text{Ar}; 1 : 15) = 1.1$ атм нормированная величина кластерного сигнала вне зависимости от расстояния до сопла оставалась на уровне 0.76 (0.24 — выход диссоциации кластеров, см. рис. 5), что с большой вероятностью позволяет трактовать кластеризацию молекул CF_3I состоявшейся уже внутри канала сопла. Но при сравнительно небольшом давлении $P_0(\text{CF}_3\text{I} + \text{Ar}; 1 : 15) = 0.52$ атм, когда зона кластеризации молекул начинает переходить из сопла наружу, процессы подавления кла-

стеризации молекул и диссоциации кластеров также начинают влиять на поведение кластерных ионных сигналов I_2^+ и I^+ в зависимости от расстояния зоны возбуждения частиц от сопла. Видно, что по мере удаления места ИК-возбуждения от сопла начальное уменьшение кластерного сигнала сменяется выходом на постоянную величину. Уменьшение кластерного сигнала при возбуждении частиц на небольших расстояниях от сопла ($X \leq 5$ мм) связано как с подавлением кластеризации свободных молекул в струе, так и с диссоциацией кластеров, которые сформировались внутри канала сопла. В случае возбуждения частиц на больших расстояниях от сопла ($X \geq 5$ мм) преимущественно происходит диссоциация кластеров. Величина наблюдаемого кластерного сигнала в этой зоне в основном определяется мощностью возбуждающего кластеры лазерного излучения, а также размером и температурой сформировавшихся кластеров [16, 19, 24].

Нами была изучена также зависимость вероятности диссоциации кластеров от плотности энергии лазерного излучения в случае возбуждения частиц вблизи выхода из сопла (в точке $X_1 = 0.5$ мм, см. рис. 7) и вдали от сопла (в точке $X_2 = 16$ мм). В области точки X_1 происходит формирование кластеров, здесь присутствуют и молекулы, и кластеры. При возбуждении частиц в этой области имеет место эффективное подавление кластеризации молекул за счет как возбуждения свободных молекул и последующего нагрева смеси, так и возбуждения и диссоциации небольших кластеров, которые являются зародышами для роста больших кластеров. В области точки X_2 процесс формирования кластеров полностью завершен, и при возбуждении частиц в результате их нагрева имеет место процесс диссоциации (фрагментации) кластеров. Плотность энергии лазера рассчитывалась на основе приведенного выше соотношения (2). Полученные результаты для двух смесей разного состава приведены на рис. 8. Кривыми 1 и 2 показаны зависимости величины кластерного сигнала I_2^+ от плотности энергии возбуждающего излучения, полученные со смесью с $P_0(\text{CF}_3\text{I} + \text{Xe}; 1 : 2) = 0.5$ атм в точках соответственно $X_1 = 0.5$ мм и $X_2 = 16$ мм. Кривой 3 показана аналогичная зависимость, полученная в точке $X_2 = 16$ мм со смесью с $P_0(\text{CF}_3\text{I} + \text{Ar}; 1 : 15) = 0.52$ атм. Отметим довольно сильное отличие в поведении зависимости 1 от поведения зависимостей 2 и 3. Значками на рис. 8 приведены усредненные по шести циклам измерений экспериментальные результаты. Разброс полученных в каждом цикле результатов показан величиной ошибки. Сплошными

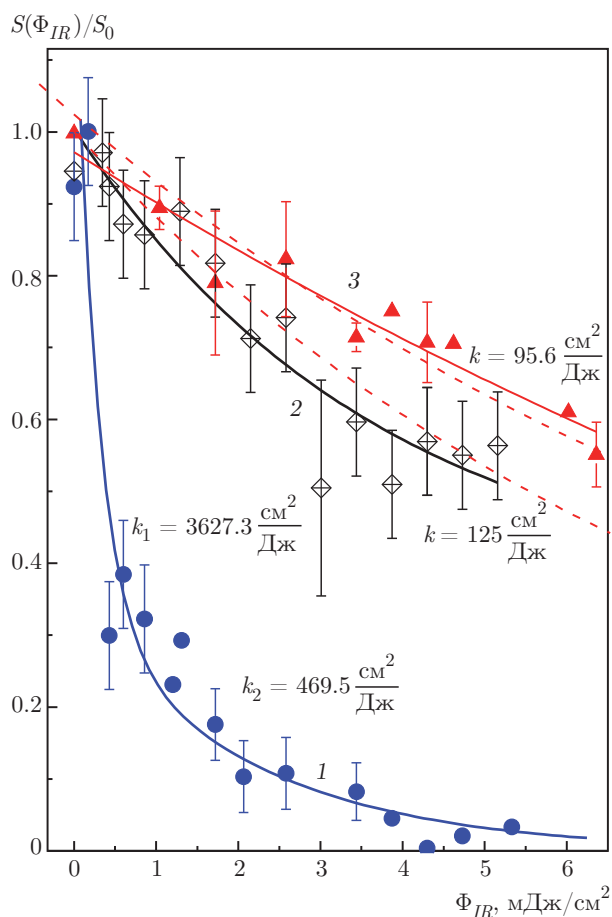


Рис. 8. (В цвете онлайн) Зависимости нормированных кластерных сигналов I_2^+ от плотности энергии лазерного излучения, $S(I_2^+; \Phi_{IR})$, в случае возбуждения частиц вблизи выхода из сопла (в точке $X_1 = 0.5$ мм, см. рис. 7) (кривая 1) и вдали от сопла (в точке $X_2 = 16$ мм) (кривые 2 и 3). Нормировка проведена на сигнал в отсутствие ИК-излучения. Линия генерации CO_2 -лазера $9R(14)$ (частота 1074.65 см^{-1}) во всех случаях. Давление и состав смесей: $P_0(CF_3I + Xe; 1 : 2) = 0.5$ атм (кривые 1 и 2) и $P_0(CF_3I + Ar; 1 : 15) = 0.52$ атм (кривая 3)

линиями показаны результаты аппроксимации экспериментальных данных экспоненциальными функциями с некоторой добавкой (см. ниже), а штриховыми линиями — результаты аппроксимации полученных экспериментальных данных моноэкспоненциальными функциями без добавки.

Проанализируем полученные результаты в рамках модели лазерной ИК-фрагментации однородных молекулярных кластеров из работы [19]. Фрагментацию кластеров в результате их возбуждения излучением ИК-лазера можно представить как квазистационарный процесс испарения молекул из кластера при температуре испарения T_{ev} , которая определяется балансом между поглощаемой кластером

энергией и энергией, затрачиваемой на последовательный отрыв молекул от кластера [19]. Эффективность фрагментации можно характеризовать крутизной спада зависимости ионного сигнала от плотности энергии ИК-излучения, $S(I_2^+; \Phi_{IR})$. В некоторых случаях эту зависимость можно аппроксимировать [16, 19] экспоненциальной функцией вида

$$S(I_2^+; \Phi_{IR}) \propto \exp[-k(\Phi_{IR} - \Phi_0)], \quad (3)$$

где Φ_0 — плотность энергии ИК-излучения, которая необходима для нагрева кластера до температуры T_{ev} , при которой устанавливается квазистационарный процесс испарения кластера, а k — параметр, зависящий от конкретных условий возбуждения и фрагментации кластера. Эффективность ИК-фрагментации кластера во многом зависит от соотношения между сечением поглощения кластера размером n , $\alpha(n)$, и энергией, необходимой для отрыва одной молекулы, $\Delta E(n)$ [16]. В упрощенном случае, если положить $\alpha(n) = \sigma n$, а $\Delta E(n) = \Delta E$, то $k = \sigma / \Delta E$, где σ — сечение поглощения одной молекулы.

Константа скорости испарения k_{ev} определяется [11, 49] соотношением, аналогичным формуле Аррениуса:

$$k_{ev} = A \exp(-\Delta E / k_B T_{cl}), \quad (4)$$

где ΔE — энергия (теплота) испарения на частицу, T_{cl} — температура кластера, k_B — постоянная Больцмана, A — предэкспоненциальный множитель. Видно, что при заданной температуре константа k_{ev} тем больше, чем меньше энергия испарения ΔE . Энергия испарения молекул из кластера уменьшается с уменьшением размера кластера [11, 14]. Следовательно, чем меньше размер кластеров, тем больше константа скорости их фрагментации [11, 14, 24].

Приведенные на рис. 8 экспериментальные данные в случае зависимости 1 довольно хорошо аппроксимируются биэкспоненциальной функцией вида

$$S(\Phi) = A_0 + A_1 \exp(-k_1 \Phi) + A_2 \exp(-k_2 \Phi), \quad (5)$$

где $A_0 = 0$, $A_1 = 0.9235$ и $A_2 = 0.3355$ — предэкспоненциальные множители, $k_1 = 3627.3 \text{ см}^2/\text{Дж}$ и $k_2 = 469.5 \text{ см}^2/\text{Дж}$ — константы скорости испарения кластеров. Экспериментальные данные 2 и 3 сравнительно хорошо аппроксимируются моноэкспоненциальной функцией вида

$$S(\Phi) = A_0 + A_1 \exp(-k\Phi) \quad (6)$$

с параметрами $A_0 = 0.3484$, $A_1 = 0.65604$ и $k = = 125 \text{ см}^2/\text{Дж}$ в случае зависимости 2 и параметрами $A_0 = -0.404$, $A_1 = 1.3759$ и $k = 95.6 \text{ см}^2/\text{Дж}$

в случае зависимости 3. Отметим, что приведенные на рис. 8 результаты по диссоциации кластеров (полученные при возбуждении частиц вдали от сопла, в области X_2) хорошо согласуются с полученными нами ранее результатами по фрагментации однородных молекулярных кластеров $(CF_3I)_n$ импульсным излучением CO_2 -лазера [24].

Довольно сильное уменьшение ионного кластерного сигнала с увеличением плотности энергии (при минимальных значениях) в случае зависимости 1 связано с тем, что в данной зоне в основном имеет место процесс подавления кластеризации молекул, поскольку лазерное излучение настроено в резонанс именно с молекулами, сечение поглощения которых в резонансе велико. Большее значение константы скорости фрагментации кластеров в случае зависимости 2 по сравнению с таковой для зависимости 3, вероятно, указывает на то, что в последнем случае из-за использования в качестве газа-носителя аргона и более сильно разбавленной смеси молекул формировались более холодные кластеры $(CF_3I)_n$. Они более стабильны по отношению к процессу фрагментации [19, 23, 24].

Отметим, что хотя в случае использования стандартного коммерческого сопла процесс кластеризации молекул при некоторых условиях можно было «вынести» наружу за срез сопла, эти условия ограничивались небольшим диапазоном давлений газа CF_3I и небольшим диапазоном соотношений между давлениями молекулярного газа и газа-носителя. Однако при таких («мягких» для кластеризации) условиях расширения молекулярный газ охлаждается не сильно, формирующиеся кластеры являются сравнительно горячими, а селективное возбуждение молекул затруднено. Кроме того, при слабом разбавлении молекул газом-носителем процессы колебательно-колебательного обмена энергией в результате столкновений приводят к потере селективности возбуждения молекул [29]. Поэтому нами было разработано сопло новой конструкции (см. рис. 5б), использование которого позволило вынести область начала кластеризации молекул в зону расширения газа на выходе из сопла.

3.2. Импульсное сопло новой конструкции и сопоставление результатов, полученных с разными соплами

3.2.1. Сопло новой конструкции

Для сопла новой конструкции нами был изготовлен фланец (тело сопла), в котором выходное отвер-

стие имело два разных диаметра, а сопло было без выходного конуса (см. рис. 5б). Отверстие большего диаметра, которое сопрягалось с керном, как и в коммерческом сопле (см. рис. 5а), имело диаметр 0.8 мм, а у выхода диаметр отверстия составлял 0.22 мм (см. рис. 5б). Длина канала узкой части отверстия составляла около 0.3 мм, а широкой — около 1.4 мм. Таким образом, новая конструкция сопла представляла собой как бы двухступенчатое сопло, в котором наиболее узким местом расширения газа было выходное отверстие диаметром 220 мкм. Проведенный нами анализ показал, что создаваемое при работе сопла давление газа в небольшом объеме канала с переменным диаметром (перед выходным отверстием) было примерно в два раза меньше давления газа над первичным соплом. Исследования, проведенные с этим соплом, показали, что как сама кластеризация газа, так и процесс начала кластеризации, происходят не внутри сопла, а в зоне расширения газа на выходе из сопла, причем это условие выполняется при работе с разными газами, составами и давлениями газа над соплом в широком диапазоне, а также с разными длительностями импульсов открывания сопла (от 200 мкс до 2 мс).

3.2.2. Сопоставление результатов, полученных с двумя типами сопел

Следует отметить, что процесс подавления кластеризации должен сопровождаться значительным (в идеале 100-процентным, см. рис. 7) уменьшением сигналов кластерной составляющей пучка при облучении струи резонансным лазерным ИК-излучением в непосредственной близости от среза сопла (на стадии зарождения кластеров) и ослаблением этого уменьшения по мере смещения зоны облучения от сопла. При облучении частиц вдали от сопла наблюдаемое уменьшение кластерного сигнала связано с диссоциацией сформировавшихся кластеров и испарением их молекул.

В экспериментах с коммерческим соплом, несмотря на трудности, связанные с рассмотренными выше конструктивными особенностями сопла, мы наблюдали процесс подавления кластеризации молекул (см. рис. 7), но только для ограниченных диапазонов давлений и соотношения газов над соплом. На рис. 9а кривой 1 показаны для сравнения результаты, полученные со стандартным соплом при использовании смеси с $P_0(CF_3I + Xe; 1 : 2) = 0.5$ атм. Такой выбор параметров (небольшое суммарное давление газа над соплом и более слабая роль охлаждающего газа-носителя) ведет

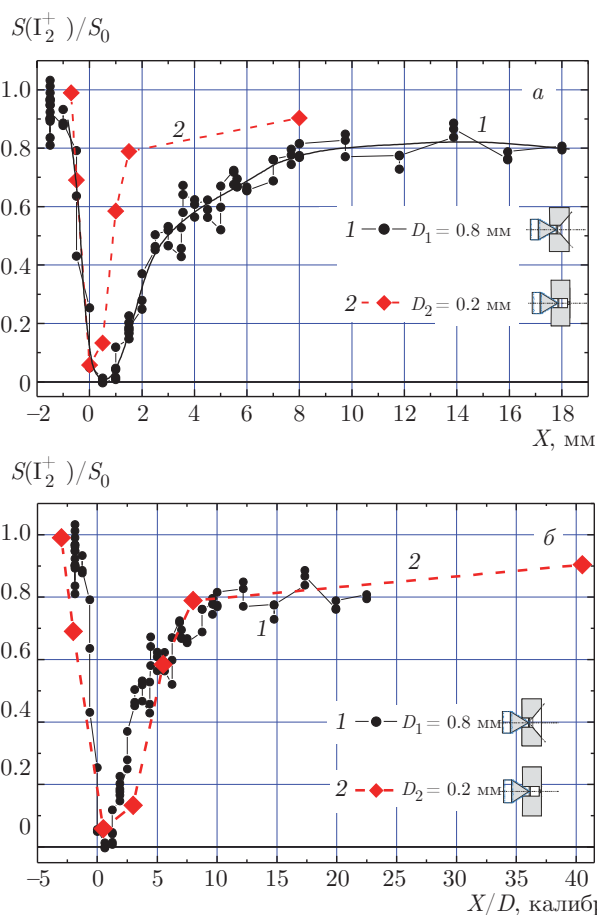


Рис. 9. (В цвете онлайн) Зависимости нормированных ионных сигналов I_2^+ от расстояния X , полученные с коммерческим соплом с конусом и соплом новой конструкции в случае использования смеси газов $\text{CF}_3\text{I} + \text{Xe}$ при соотношениях давлений 1 : 2 (кривые 1) и 1 : 2.3 (кривые 2) и суммарном давлении газа над соплом соответственно 0.5 и 0.95 атм. Молекулярный пучок облучался излучением CO_2 -лазера мощностью соответственно 4 и 6.4 Вт (интенсивности 27.6 и 44.2 кВт/см²) на линии $9R(14)$ (частота 1074.65 см⁻¹). Расстояние зоны возбуждения от сопла приведено в миллиметрах (а) и в калибрах (б), т. е. в величинах X/D , где D — диаметр отверстия сопла

к затягиванию начала кластеризации молекул. В результате появляется возможность влиять на процесс кластеризации за счет облучения молекул ИК-излучением на выходе из сопла. Как видно на рис. 9а, в данном случае наблюдается сильный (практически 100-процентный) эффект подавления кластеризации молекул при возбуждении газовой струи на расстоянии $X \leq 1$ мм от выхода из сопла. Кривой 2 на этом же рисунке представлены результаты измерений при использовании сопла новой конструкции (малой апертуры). Видно, что и в этом

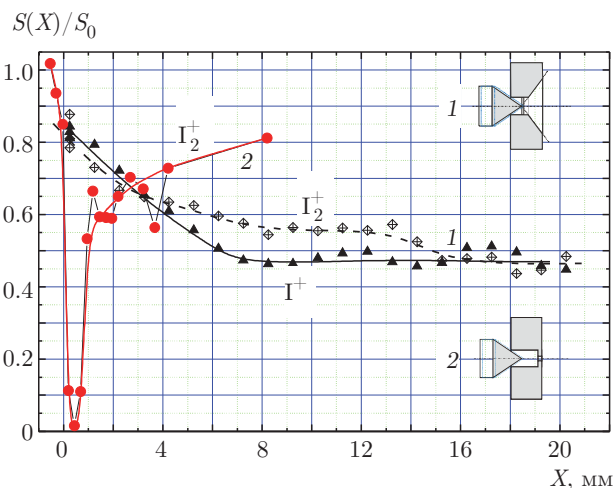


Рис. 10. (В цвете онлайн) Зависимости нормированных ионных сигналов I_2^+ и I^+ от расстояния X между точкой выхода из сопла и зоной облучения молекулярного пучка: 1 — результаты получены с коммерческим соплом с выходным конусом, использовалась смесь газов $\text{CF}_3\text{I} + \text{Ar}$ в соотношении 1 : 15 при суммарном давлении 0.55 атм, мощность лазера 7.8 Вт (интенсивность 53.8 кВт/см²); 2 — результаты получены с соплом новой конструкции, использовалась смесь газов $\text{CF}_3\text{I} + \text{Ar}$ в соотношении 1 : 15 при суммарном давлении 0.95 атм, мощность лазера 6.5 Вт (интенсивность 44.8 кВт/см²). Линия генерации лазера $9R(14)$ (частота 1074.65 см⁻¹) в обоих случаях

случае наблюдается практически 100-процентное падение сигнала, но в областях более близких к срезу сопла. Это связано с различием выходных апертур у сопел.

На рис. 9б показаны результаты, приведенные на рис. 9а, в зависимости от расстояния в калибрах, т. е. в величинах X/D , где D — диаметр отверстия сопла. Такое представление полученных результатов позволяет сопоставлять данные, полученные с соплами, имеющими разные диаметры выходных отверстий. Так, на рис. 9б видно, что результаты, полученные с двумя типами сопел, хорошо совпадают между собой. Следует отметить, что именно расстояние в калибрах чаще всего используется в литературе при описании разного рода явлений и процессов в молекулярных пучках, поскольку калибр является более фундаментальной величиной для масштаба протекающих процессов, чем расстояние от сопла в миллиметрах.

Другой пример сравнения результатов измерений при использовании коммерческого сопла и сопла малой апертуры при одинаковом составе газа $\text{CF}_3\text{I} + \text{Ar}$ в соотношении 1 : 15, дающий качественное различие поведения измеряемых величин, пред-

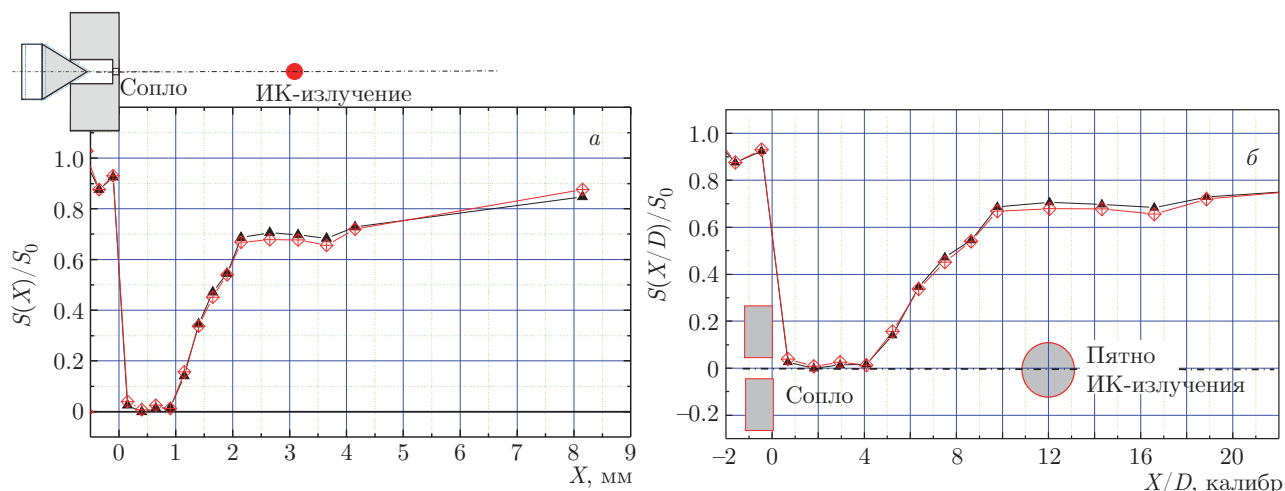


Рис. 11. (В цвете онлайн) *а*) Зависимости нормированных ионных сигналов I_2^+ (\diamond) и I^+ (\blacktriangle) от расстояния X , полученные с соплом новой конструкции в случае использования смеси газов $CF_3I + Ar$ в соотношении 1 : 2 при суммарном давлении 3 атм. Молекулярный пучок облучался излучением CO_2 -лазера мощностью 6.4 Вт (интенсивность 44.2 кВт/см²) на линии 9R(14) (частота 1074.65 см⁻¹). *б*) Данные рис. 11*а* показаны для случая, когда расстояние от сопла до зоны облучения пучка приведено в калибрах

ставлен на рис. 10. Здесь для сопла малой апертуры (кривая 1) наблюдается сильный (практически 100-процентный) эффект подавления кластеризации молекул в случае облучения пучка на расстоянии $X \leq 1$ мм от выхода из сопла. В случае использования коммерческого сопла (кривая 2) заметного эффекта подавления процесса кластеризации молекул мы не наблюдали (см. также рис. 7). В ходе экспериментов нами было установлено, что с соплом новой конструкции индуцируемое излучением ИК-лазера подавление кластеризации молекул наблюдается при разных давлениях и разных соотношениях между давлениями молекулярного газа CF_3I и газа-носителя Ar , а также He . Это подтверждается результатами, приведенными ниже.

На рис. 11*а* показаны зависимости ионных сигналов I_2^+ и I^+ от расстояния X , полученные с соплом новой конструкции в случае использования смеси газов $CF_3I + Ar$ в соотношении 1 : 2 при суммарном давлении 3 атм. Как видно на рисунке, наблюдается почти 100-процентный эффект подавления кластеризации молекул. На рис. 11*б* эти же данные показаны для случая, когда расстояние от сопла до зоны облучения пучка приведено в калибрах.

На рис. 12 приведены результаты исследований процесса подавления кластеризации с соплом новой конструкции в случае использования смеси газов $CF_3I + He$ в соотношении 1 : 2.3 при суммарном давлении газа над соплом 3 атм. Видно, что и в этом

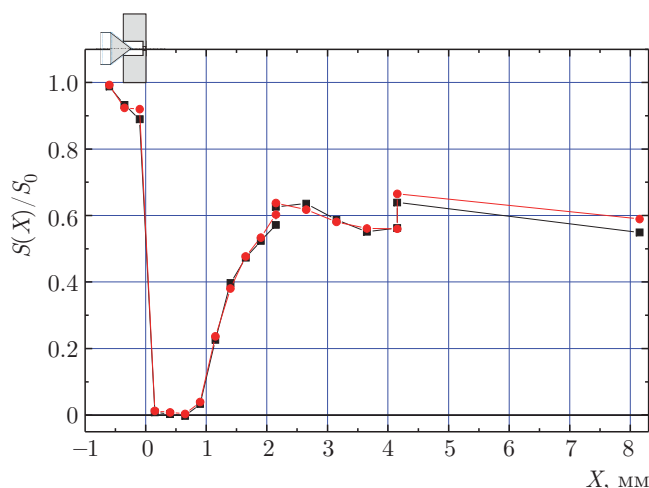


Рис. 12. (В цвете онлайн) Зависимости нормированных ионных сигналов I_2^+ (\bullet) и I^+ (\blacksquare) от расстояния X , полученные с соплом новой конструкции в случае использования смеси газов $CF_3I + He$ в соотношении 1 : 2.3 при суммарном давлении 3 атм. Молекулярный пучок облучался излучением CO_2 -лазера мощностью 7.5 Вт (интенсивность 51.7 кВт/см²) на линии 9R(14) (частота 1074.65 см⁻¹)

случае имеет место сильный эффект подавления кластеризации молекул CF_3I при облучении частиц на малых ($X \leq 1-1.2$ мм) расстояниях от сопла. При облучении частиц на расстояниях $X \geq 2$ мм от сопла уменьшение кластерной составляющей сигнала связано с диссоциацией кластеров $(CF_3I)_n$.

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Исследована возможность управления процессом образования молекулярных кластеров $(CF_3I)_n$ при сверхзвуковом расширении смеси газов CF_3I/Ar и CF_3I/Xe из импульсного сопла в результате колебательного возбуждения молекул и кластеров резонансным лазерным ИК-излучением вблизи выхода из сопла.

Изучена зависимость эффективности лазерного воздействия на процессы подавления кластеризации молекул и диссоциации кластеров от положения области возбуждения в пространстве между соплом и скиммером, а также от давления и состава газа над соплом и от конструкции сопла. Показано, что в области завершённой конденсации молекул уменьшение кластерной составляющей пучка связано с распадом кластеров в результате их нагрева и диссоциации резонансным излучением ИК-лазера.

Установлено, что при использовании стандартного коммерческого импульсного сопла (с выходным отверстием диаметром 0.8 мм) в условиях выполненных измерений (а именно, при высоких давлениях газа над соплом и сильном разбавлении CF_3I газом-носителем) значительная конденсация молекул происходит уже внутри канала сопла, что делает невозможным управление кластеризацией молекул с помощью лазера. Разработано сопло новой конструкции, что позволило «вынести» область кластеризации молекул за срез сопла и обеспечить возможность эффективного управления процессом кластеризации молекул с помощью ИК-лазера.

Показано, что эффективность подавления кластеризации молекул и диссоциации кластеров существенно зависят от мощности возбуждающего лазерного излучения, от конструкции сопла, а также от расстояния зоны облучения до «среза» сопла. Установлены параметры, при которых реализуется наиболее эффективное управление процессами подавления кластеризации молекул и диссоциации кластеров в пучках. Измерены константы скоростей для процессов подавления кластеризации молекул и диссоциации кластеров при разных плотностях энергии возбуждающего лазерного излучения.

Полученные результаты показывают принципиальную возможность использования исследованных эффектов подавления кластеризации молекул и диссоциации кластеров (или их комбинации) для управления параметрами молекулярных и кластерных пучков, что необходимо во многих экспериментах, а также для реализации компонентно- и/или изотопно-селективных процессов, в том числе для лазерного разделения изотопов [50–55].

Работа выполнена при частичной финансовой поддержке РФФИ (гранты №№ 15-02-04927, 16-02-00139).

ЛИТЕРАТУРА

1. H. Pauly, *Atom, Molecule, and Cluster Beams II, Cluster Beams, Fast and Slow Beams, Accessory Equipment and Applications*, Springer, New York (2000).
2. *Atomic and Molecular Beam Methods*, Vol. 1, ed. by G. Scoles, Oxford Univ. Press, New York (1988).
3. *Atomic and Molecular Beam Methods*, Vol. 2, ed. by G. Scoles, Oxford Univ. Press, New York (1992).
4. *Clusters of Atoms and Molecules*, Vol. 1, ed. by H. Haberland, Springer-Verlag, Heidelberg (1994).
5. M. Kappes and S. Leutwyler, in *Atomic and Molecular Beam Methods*, Vol. 1, ed. by G. Scoles, Oxford Univ. Press, New York (1988), p. 380.
6. Г. Н. Макаров, УФН **176**, 121 (2006).
7. U. Buck and F. Huisken, *Chem. Rev.* **100**, 3863 (2000).
8. J. F. Winkel, C. A. Woodward, A. B. Jones, and A. J. Stace, *J. Chem. Phys.* **103**, 5177 (1995).
9. C. T. Rettner, D. J. Auerbach, J. C. Tully, and A. W. Kleyn, *J. Phys. Chem.* **100**, 13021 (1996).
10. J. M. Mestdagh, M. A. Gaveau, C. Gee et al., *Int. Rev. Phys. Chem.* **16**, 215 (1997).
11. Г. Н. Макаров, УФН **178**, 337 (2008).
12. V. N. Popok, I. Barke, and E. E. B. Campbell, *Surf. Sci. Rep.* **66**, 347 (2011).
13. A. Perez, P. Melinon, V. Dupuis et al., *J. Phys. D* **30**, 709 (1997).
14. Г. Н. Макаров, УФН **180**, 185 (2010).
15. V. N. Lokhman, D. D. Ogurok, and E. A. Ryabov, *Chem. Phys.* **333**, 85 (2007).
16. В. Н. Лохман, Д. Д. Огурок, Е. А. Рябов, ЖЭТФ **135**, 835 (2009).
17. В. М. Апатин, В. Н. Лохман, Д. Д. Огурок и др., ЖЭТФ **139**, 5 (2011).
18. В. М. Апатин, В. О. Компанец, В. Н. Лохман и др., ЖЭТФ **142**, 644 (2012).
19. V. N. Lokhman, D. D. Ogurok, and E. A. Ryabov, *Eur. Phys. J. D* **67**, 66 (2013).
20. В. М. Апатин, В. Н. Лохман, Г. Н. Макаров и др., Письма в ЖЭТФ **97**, 800 (2013).

21. D. G. Poydashev, V. N. Likhman, O. V. Kompanets et al., *J. Phys. Chem. A* **118**, 11177 (2014).
22. V. M. Apatin, V. N. Likhman, G. N. Makarov et al., *Laser Phys. Lett.* **12**, 016002 (2015).
23. Г. Н. Макаров, *УФН* **187**, 241 (2017).
24. В. М. Апатин, В. Н. Лохман, Г. Н. Макаров и др., *ЖЭТФ* **147**, 218 (2015).
25. В. О. Компанец, В. Н. Лохман, Д. Г. Пойдашев и др., *ЖЭТФ* **149**, 723 (2016).
26. Г. Н. Макаров, А. Н. Петин, *Письма в ЖЭТФ* **93**, 123 (2011).
27. Г. Н. Макаров, А. Н. Петин, *Письма в ЖЭТФ* **97**, 82 (2013).
28. Г. Н. Макаров, А. Н. Петин, *ЖЭТФ* **146**, 455 (2014).
29. Г. Н. Макаров, *УФН* **185**, 717 (2015).
30. M. Lewerenz, B. Schilling, and J. P. Toennies, *J. Chem. Phys.* **102**, 8191 (1995).
31. J. Harms, J. P. Toennies, and S. Dalfovo, *Phys. Rev. B* **58**, 3341 (1998).
32. Г. Н. Макаров, *УФН* **176**, 1155 (2006).
33. В. М. Апатин, В. Н. Лохман, Г. Н. Макаров и др., *Письма в ЖЭТФ* **97**, 82 (2016).
34. J.-M. Zellweger, J.-M. Philippoz, P. Melinon et al., *Phys. Rev. Lett.* **52**, 522 (1984).
35. P. Melinon, R. Monot, J.-M. Zellweger, and H. van den Bergh, *Chem. Phys.* **84**, 345 (1984).
36. J.-M. Philippoz, J.-M. Zellweger, H. van den Bergh, and R. Monot, *J. Phys. Chem.* **88**, 3936 (1984).
37. J.-M. Philippoz, J.-M. Zellweger, H. van den Bergh, and R. Monot, *Surf. Sci.* **156**, 701 (1985).
38. J. M. Philippoz, B. Calpini, R. Monot, and H. van den Bergh, *Berichte der Bunsengesellschaft für Phys. Chem.* **89**, 291 (1985).
39. H. Van den Bergh, *Laser and Optoelectronik* No. 3, 263 (1985).
40. W. Fuss, *Spectrochim. Acta A* **38**, 829 (1982).
41. В. Н. Баграташвили, В. С. Должиков, В. С. Летохов и др., *ЖЭТФ* **77**, 2238 (1979).
42. Г. Н. Макаров, В. Н. Лохман, Д. Е. Малиновский, Д. Д. Огурок, *КЭ* **25**, 545 (1998).
43. J. W. Eerkens and J. Kim, *AIChE J.* **56**, 2331 (2010).
44. <http://www.silex.com.au>.
45. SILEX Process, www.chemeurope.com/en/encyclopedia/Silex_Process.html.
46. SILEX Uranium Enrichment, SILEX Annual Report 2014, <http://www.silex.com.au>.
47. J. L. Lyman, Report LA-UR-05-3786, Los Alamos National Laboratory (2005).
48. Г. Н. Макаров, *УФН* **175**, 41 (2005).
49. J. Gspann, in *Physics of Electronic and Atomic Collisions*, ed. by S. Dats, North Holland, Amsterdam (1982), p. 79.
50. Y. T. Lee, US Patent 4, 032, 306 (1977).
51. J. W. Eerkens, *Laser and Particle Beams* **16**, 295 (1998).
52. J. Kim, J. W. Eerkens, M.-Ho Yang, Ch.-K. Rhee, and W. W. Kim, in *Transactions of the Korean Nuclear Society Spring Meeting*, Jeju, Korea (2009).
53. J. Kim, J. W. Eerkens, and W. H. Miller, *Nuclear Sci. Engineering* **156**, 219 (2007).
54. K. A. Lyakhov and H. J. Lee, *Appl. Phys. B* **111**, 261 (2013).
55. K. A. Lyakhov, H. J. Lee, and A. N. Pechen, *Separation and Purification Technology* **176**, 402 (2017).