

ИСПОЛЬЗОВАНИЕ ВОЗБУЖДЕННЫХ АТОМОВ ДЛЯ ИЗУЧЕНИЯ КОМПОНЕНТЫ Ag В МОЛЕКУЛЯРНОМ ПУЧКЕ, ПОЛУЧЕННОМ ИЗ СМЕСИ Ag—He

А. В. Колосов, С. Г. Мионов

(Новосибирск)

Для исследования компоненты Ag в молекулярном пучке, полученном при истечении бинарной смеси Ag—He из соплового источника, применен время-пролетный метод с регистрацией возбужденных атомов Ag*, образующихся при электронном ударе. Показано, что при соответствующем выборе параметров системы регистрации вклад в суммарный сигнал от смеси будут давать в основном атомы Ag*.

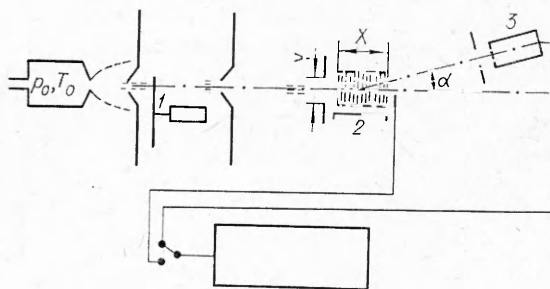
С помощью описываемой методики изучена зависимость интенсивности, скорости и коэффициента обогащения Ag от концентрации Ag в исходной смеси.

Одним из способов получения интенсивных молекулярных пучков со скоростями, превышающими тепловые, является использование бинарной смеси тяжелого и легкого газов, истекающей в вакуум через сопло или отверстие [1—3]. Для оценки параметров пучков, получаемых таким способом, необходимо изучать каждую компоненту смеси отдельно. В работе [4] отмечается принципиальная возможность отдельного изучения каждой компоненты путем регистрации возбужденных атомов с относительно большим временем жизни ($\sim 10^{-4}$ с) в случае, если возбужденные уровни для разных компонент заметно различаются по энергии. Однако данных о практической реализации этой идеи в литературе не имеется.

В данной работе метод выделения возбужденных атомов Ag* из смеси Ag*—He* основан на выборе параметров системы возбуждения и регистрации таким образом, чтобы она была чувствительна к Ag* и мало чувствительна к He*. Основой такого выбора служат: различие поперечных импульсов, передаваемых электронами при неупругих взаимодействиях с атомами Ag и He; различие в функциях возбуждения Ag* и He* электронным ударом; различие времен жизни возбужденных атомов. Вклад каждого из этих факторов в итоговое отношение сигналов Ag* и He* определен экспериментально.

Эксперименты были проведены в вакуумной камере с газодинамическим источником молекулярного пучка. Блок-схема оборудования экспериментальной установки приведена на фиг. 1. Подробное описание вакуумной системы и системы регистрации с накоплением сигнала дано в [5].

Возбуждение молекулярного пучка, модулированного с помощью механического прерывателя 1, осуществлялось электронной пушкой Пирса 2 с направлением движения электронов, нормальным к оси молеку-



Фиг. 1

лярного пучка. Протяженность электронного пучка X составляла 20 мм, размер входной диафрагмы Y в направлении движения электронов 5 мм. В качестве детектора возбужденных атомов использовался вторично-электронный умножитель Z типа ВЭУ-1А. Защита ВЭУ от попадания ионов обеспечивалась вытягиванием их на отдельный коллектор, а от электронов — отрицательным напряжением 2,6 кВ на входной сетке ВЭУ. ВЭУ располагался на координатном механизме, имеющем перемещение по углу α в плоскости XU . Угловое разрешение детектора $\approx 1,5^\circ$ обеспечивалось выбором входной диафрагмы перед ВЭУ диаметром 8 мм и расстояния от области возбуждения до входной диафрагмы 280 мм. Параметры молекулярного пучка в основном и возбужденном состоянии определялись время-пролетным методом.

Для определения вклада, который давала фотоэмиссия в полный сигнал с ВЭУ, между электронной пушкой и ВЭУ устанавливался фильтр из LiF, пропускающий излучение с минимальной длиной волны 1000 Å и предохраняющий вход ВЭУ от попадания возбужденных атомов. Как показали измерения, сигнал от фотонов не был замечен на фоне шумов, т. е. практически отсутствовал.

Поскольку было обнаружено, что коэффициент усиления ВЭУ с течением времени (за десятками часов работы) несколько уменьшается, в процессе измерений периодически производилась проверка коэффициента усиления всей системы при постоянных значениях параметров в форкамере. В случае изменения усиления вносились соответствующие поправки в результат.

Ниже изложены факторы, на которых основан выбор параметров системы регистрации для получения максимального отношения сигналов Ar^* и He^* .

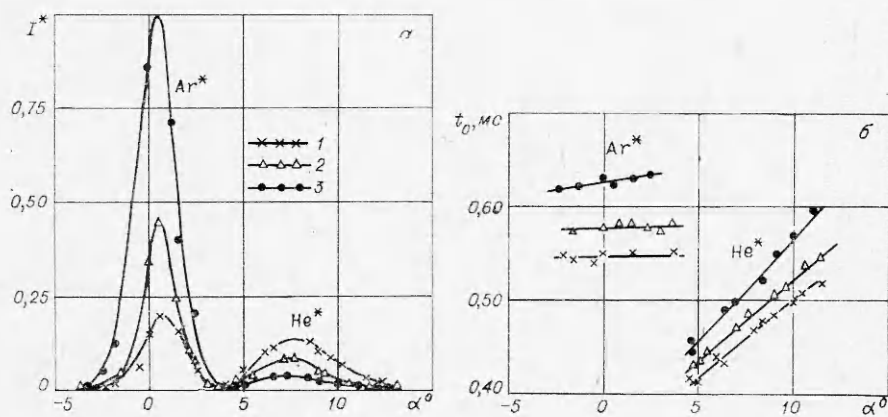
Если электронный и молекулярный пучки пересекаются, то направление максимума пучка возбужденных частиц будет смещаться от оси невозбужденного пучка за счет поперечного импульса (импульса отдачи), получаемого частицами при возбуждении. Расчет таких смещений сделать трудно, так как неизвестно пространственное распределение электронов, рассеянных после взаимодействия. Согласно результатам [6], полученным для H^* , и оценкам, сделанным в [7] для Ar^* и He^* , величины угловых смещений для легких газов могут быть значительными ($5 \div 15^\circ$), а для тяжелых — существенно меньше ($\sim 1^\circ$). В данной работе экспериментально определены угловые распределения интенсивностей I^* и средних времен пролета t_0 для чистых Ar^* и He^* и для их смесей. В качестве меры интенсивности использовалась амплитуда время-пролетного сигнала. Среднее время пролета определялось по положению максимума сигнала.

Для чистых газов получены следующие результаты: максимум углового распределения интенсивности возбужденных атомов смещается относительно оси невозбужденного пучка на угол α_m , значение которого изменяется в пределах $0,5 \div 1^\circ$ для Ar^* и $8 \div 12^\circ$ для He^* при изменении температуры в форкамере T_0 в диапазоне $20 \div 500^\circ C$. Для He^* величина α_m подчиняется зависимости $\alpha_m V = \text{const}$, где V — скорость пучка. Для Ar^* значение α_m порядка погрешности измерения угла, поэтому трудно установить какие-либо закономерности. Интенсивность He^* в направлении максимума Ar^* не превышает 0,05 от своего максимального значения при всех скоростях.

Изучение угловых распределений He^* для различных энергий электронов E показало, что в области E , ненамного превышающей энергию возбуждения He^* ($E^* = 23,1$ эВ), значения α_m соответствуют углам, полученным из ньютоновской векторной диаграммы [6] в предположении, что элект-

роны равновероятно рассеиваются во все стороны. При $E > 50$ эВ положение максимума совпадает со значением, полученным для модели рассеяния электронов на малые углы.

Из результатов, полученных для чистых газов, следует, что при возбуждении пучка, образованного смесью Ar — He, будет иметь место пространственное разделение атомов Ar* и He*. На фиг. 2 приведены угловые



Фиг. 2

распределения I^* и t_0 для смесей Ar — He с различной концентрацией γ аргона: 1 — $\gamma=0,003$; 2 — $\gamma=0,006$; 3 — $\gamma=0,01$ при $T_0=500^\circ\text{C}$, $p_0=100$ мм рт. ст. Идентификация компонент Ar* и He* в этом случае осуществлялась из сравнения положений максимумов интенсивности и значений времени пролета для чистых газов и для смесей. Видно, что обе компоненты четко разделены в пространстве; угловые распределения t_0 свидетельствуют о селективном влиянии импульса отдачи на частицы с разными скоростями. Частицы одного сорта, имеющие меньшие скорости, отклоняются на большие углы. Влияние импульса отдачи на распределение скоростей для Ar* существенно меньше, чем для He*, и в оценках, не требующих большой точности, этим влиянием можно пренебречь.

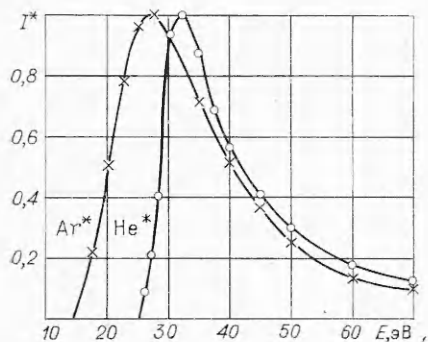
Таким образом, пространственное разделение возбужденных атомов Ar* и He* может быть использовано для изучения компоненты Ar в молекулярном пучке, полученном из смеси Ar — He.

Для определения оптимальных условий возбуждения каждого газа была изучена зависимость I^* от E (функция возбуждения) при постоянном токе эмиссии I_0 . Кривые $I^*(E)$ снимались при таких положениях ВЭУ, которые соответствовали максимумам угловых распределений интенсивности при $E=30$ эВ и $T_0=500^\circ\text{C}$, т. е. для He* $\alpha_m=8^\circ$, для Ar* $\alpha_m=0,5^\circ$. Кривые функций возбуждения приведены на фиг. 3. Для удобства сопоставления каждая кривая нормирована на свой максимум. Максимальные значения сигналов He* и Ar* при одинаковых параметрах в форкамере относятся как 1 : 3. Это может быть обусловлено различиями во временах жизни возбужденных атомов, в величинах коэффициентов вторичной эмиссии ВЭУ, в сечениях возбуждения электронным ударом. Из фиг. 3 видно, что можно выбрать такие значения E для возбуждения смеси, при которых сигнал от Ar* будет существенно превосходить сигнал от He*.

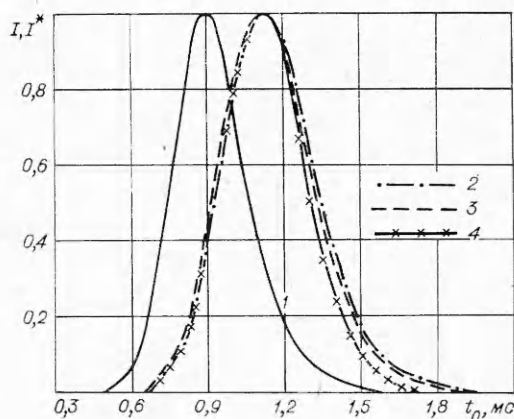
Таким образом, для выделения сигнала от Ar* в смеси Ar* — He* может быть использовано также различие в функциях возбуждения Ar* и He*, если по условиям работы нельзя использовать пространственное

разделение компонент или детектор не имеет достаточного углового разрешения.

Конечное время жизни возбужденных атомов приводит к деформации их время-пролетной кривой по сравнению с время-пролетным распределением невозбужденных атомов. Для восстановления время-пролетного



Фиг. 3



Фиг. 4

распределения невозбужденных атомов нужно знать количество возбужденных уровней, дающих основной вклад в регистрируемый сигнал и их средние времена жизни τ .

Если основной вклад в сигнал дают возбужденные атомы с одним значением τ , то зависимость амплитуды сигнала I^* от времени пролета между электронной пушкой и ВЭУ может быть записана в виде

$$(1) \quad I^* = aI_0^* \exp\{-t_1/\tau\},$$

где I_0^* — интенсивность возбужденных атомов на границе области возбуждения, ближайшей к ВЭУ; a — постоянный коэффициент. Изменяя каким-либо способом $t_1 = l_0/V$ (изменением скорости пучка V или расстояния l_0 между электронной пушкой и ВЭУ), можно проверить, выполняется ли зависимость (1), и найти значение τ .

Поскольку площадь входной диафрагмы ВЭУ соизмерима с площадью поперечного сечения пучка, изменение l_0 приведет к дополнительной зависимости $I^*(l_0)$ за счет расходимости пучка, учесть которую трудно. Поэтому изменение t_1 осуществлялось изменением скорости пучка V , являющейся функцией температуры газа в форкамере T_0 . Однако от T_0 зависит также интенсивность пучка атомов в основном состоянии I_0 , а следовательно, и I_0^* . Чтобы исключить эту зависимость, исследовалась не $I^*(t_1)$, а $K(t_1) = I^*/I^+$, где I^+ — сигнал с коллектора ионов при работе электронной пушки в режиме ионизационного детектора, что достигалось увеличением энергии электронного пучка до 150 эВ. Для процессов возбуждения и ионизации электронным пучком можно записать $I_0^* = bI_0$, $I^+ = cI_0$, где b и c — коэффициенты возбуждения и ионизации, которые зависят от V или T_0 одинаковым образом. Следовательно, зависимость $K(t_1)$ дает искомую функцию с точностью до постоянного множителя.

Оказалось, что зависимость $\ln K$ от t_1 в пределах ошибки измерения имеет линейный характер как для Ar^* , так и для He^* . Отсюда следует,

что среди приходящихся на ВЭУ возбужденных атомов преобладают атомы с одним временем жизни τ , которое может быть определено из зависимости $\ln K(t_1)$. Значения τ для Ar^* и He^* , полученные из эксперимента, составляют $\tau_{\text{Ar}} = (1,8 \pm 0,3) \cdot 10^{-4}$ с, $\tau_{\text{He}} = (1 \pm 0,2) \cdot 10^{-4}$ с. В пределах изменения E от 25 до 35 эВ значение τ_{Ar} не зависит от E .

По измеренным временам жизни были идентифицированы соответствующие электронные переходы с возбужденных уровней. Согласно [8-9], для Ar^* переход $5p \left[1 \frac{1}{2}\right] \rightarrow 4s' \left[\frac{1}{2}\right]^0$ имеет время жизни $1,9 \cdot 10^{-4}$ с, близкое к полученному экспериментально. Это соответствует переходу из состояния с энергией $E_2 = 14,53$ эВ в состояние с энергией $E_1 = 11,83$ эВ. С уровня $4s' \left[\frac{1}{2}\right]^0$ происходит переход на основной уровень $3p^6 \ ^1S_0$ за время $1,4 \cdot 10^{-9}$ с [10]. Таким образом, основной вклад в сигнал с ВЭУ у Ar^* дает возбужденный уровень с энергией 14,53 эВ, с которого происходит каскадный переход на основной уровень. Это подтверждается и значением пороговой энергии возбуждения $\approx 14,5$ эВ, которое может быть получено как точка пересечения кривой $I^*(E)$ с осью абсцисс.

В таблицах [8-9] можно найти ряд других переходов, времена жизни которых $\sim 10^{-4}$ с, но они имеют малую относительную интенсивность. Учет переходов с временами жизни, ближайшими к основному, с соответствующими весами по интенсивности дает вычисленное значение $\tau_{\text{Ar}} = 1,81 \cdot 10^{-4}$ с. Для He табличное [11] время жизни, ближайшее к полученному экспериментально, имеет величину $\tau_{\text{He}} = 0,8 \cdot 10^{-4}$ с и соответствует переходу $3 \ ^3D \rightarrow 3 \ ^3P_0$.

Была сделана качественная оценка правильности определения τ для Ar^* и оценка влияния ошибки в определении τ на параметры время-пролетного сигнала. Для этой цели по экспериментальной время-пролетной кривой ионного тока Ar^+ (фиг. 4, кривая 1) были рассчитаны кривые сигналов Ar^* с ВЭУ с учетом полученного τ . При этом для расчетов были использованы два значения τ : $\tau = 1,8 \cdot 10^{-4}$ с — среднее значение (кривая 2) и $\tau = 1,5 \cdot 10^{-4}$ с — минимальное значение (кривая 3), находящееся в пределах ошибки измерения. Расчетные кривые сравнивались с экспериментальной время-пролетной кривой 4, полученной при регистрации Ar^* . Видно, что кривые, рассчитанные для $\tau = 1,8 \cdot 10^{-4}$ с и $\tau = 1,5 \cdot 10^{-4}$ с незначительно отличаются одна от другой. Кривая измеренного сигнала Ar^* мало отличается от расчетных в области малых t (больших скоростей). В области больших t у экспериментальной кривой наблюдается недостаток медленных частиц, относительная величина которого увеличивается с увеличением t . Это может быть объяснено влиянием импульса отдачи, вызывающего преимущественное отклонение медленных атомов от оси пучка. Недостаток медленных атомов в измеренном сигнале Ar^* будет мало сказываться при определении полного потока (площадь под экспериментальной кривой меньше площади под расчетными кривыми на 5%). Положения максимумов экспериментальной и расчетной кривых практически совпадают, заметное отличие наблюдается только в полуширине, где разница между измеренной и расчетной кривой составляет 10%.

Таким образом, использованный метод определения τ позволяет с достаточной точностью находить время-пролетное распределение атомов в основном состоянии по форме время-пролетной кривой возбужденных атомов.

Отметим, что различие во временах жизни Ar^* и He^* также может быть использовано для выделения сигнала от Ar^* из смеси. Если поло-

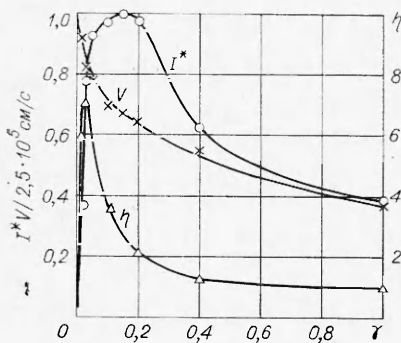
жить [3], что скорости обеих компонент в смеси одинаковы и равны V , то отношение интенсивностей Ag^* и He^* будет

$$q = \frac{I_{Ag}^*}{I_{He}^*} = B \exp \left\{ -\frac{l_0}{V} \left(\frac{1}{\tau_{Ag}} - \frac{1}{\tau_{He}} \right) \right\},$$

где B — постоянный коэффициент. Увеличивая расстояние l_0 между электронной пушкой и ВЭУ при постоянных V , τ_{Ag} и τ_{He} , можно получить достаточно большое значение q .

Была сделана оценка отношения сигналов Ag^* и He^* в смеси с учетом эффекта отдачи, функций возбуждения Ag^* и He^* и времен жизни возбужденных атомов для положения детектора, соответствующего максимуму углового распределения Ag^* . Для 10%-ной концентрации Ag в форкамере эта оценка дает минимальное отношение ~ 15 . Однако измеренное значение отношения оказалось существенно выше.

Описанный метод регистрации был использован для определения такого состава смеси $Ag - He$, который обеспечил бы относительно высокую интенсивность молекулярного пучка Ag при скорости атомов Ag , близкой к скорости атомов He . Для этого измерялась интенсивность и средняя скорость пучков Ag , He и смесей $Ag - He$ с различной концентрацией Ag . Во всех измерениях этой серии ось ВЭУ совпадала с осью возбужденного пучка, поскольку угол отклонения максимума пучка Ag^* ($\alpha_m \simeq 0,5^\circ$) меньше углового разрешения ВЭУ. Скорость пучка чистого He определялась по время-пролетному сигналу ионного тока. Скорость и интенсивность Ag в смеси определялась по сигналу Ag^* .



Фиг. 5

Оказалось, что сигналы от исследованных смесей при различных концентрациях Ag в 30 ÷ 100 раз выше сигнала от чистого He^* . Так как в пучке $Ag - He$ плотность и скорость He ниже, чем в пучке чистого He при одинаковых значениях p_0 , то относительный вклад He^* в полный сигнал от смеси будет еще меньше, чем отношение измеренных сигналов для чистых газов. На основании этого вкладом He^* в полный сигнал от возбужденных атомов смеси можно пренебречь и считать, что сигнал от $Ag^* - He^*$ обусловлен полностью атомами Ag^* .

На фиг. 5 приведены зависимости интенсивности I^* (в относительных единицах) и скорости V пучка Ag^* от концентрации аргона γ в исходной смеси при давлении в форкамере $p_0 = 100$ мм рт. ст. и температуре $T_0 = 500^\circ C$. Видно, что при значениях $\gamma = 0,03 \div 0,1$ скорость Ag близка к максимальной скорости He . Величина регистрируемого сигнала при этом существенно выше, чем для чистого Ag . Это не может быть объяснено только уменьшением времени пролета, а свидетельствует об обогащении аргоном области вблизи оси пучка. Для оценки степени увеличения интенсивности Ag в смеси по сравнению с расчетным значением введем некоторый параметр — коэффициент обогащения $\eta = I_{II} / I_p$, где I_{II} — измеренная интенсивность Ag в смеси, I_p — расчетная интенсивность, учитывающая только увеличение скорости Ag за счет разгона гелием.

На фиг. 5 представлена зависимость η от γ , которая позволяет судить о степени увеличения относительной концентрации Ar на оси пучка по сравнению с концентрацией в фторкамере.

Поступила 11 X 1974

ЛИТЕРАТУРА

1. *Беляев Ю. Н., Леонас В. Б.* Получение интенсивных молекулярных пучков.— «Вестн. Моск. ун-та», 1963, т. 34, № 5.
2. *Anderson J. B.* Intermediate energy molecular beams from free jets of mixed gases.— «Entropie», 1967, N 18.
3. *Боровков И. С., Вершинин И. Д., Павлов Э. П., Санкович В. М.* К определению парциальных интенсивностей компонентов молекулярного потока.— ПМТФ, 1968, № 5.
4. *French J. B., Locke J. W.* A time-of-flight velocity analyzer using metastable molecules.— In: Rarefied Gas Dynamics. Vol. 2, N. Y. —L., Acad. press, 1967.
5. *Колосов А. В.* Взаимодействие молекулярного пучка гелия с поверхностью германия при наличии адсорбированного слоя.— «Изв. СО АН СССР. Сер. техн. наук», 1975, № 3, вып. 1.
6. *Stebbins R. F., Fite W. L., Hummer D. G., Brackmann R. T.* Collision of electrons with hydrogen atoms.— «Phys. Rev.», 1960, vol. 19, N 6.
7. *Rundel R. D., Dunning F. B., Stebbins R. F.* Velocity distributions in metastable atom beams produced by coaxial electron impact.— «Rev. Scient. Instrum.», 1974, vol. 45, N 1.
8. *Касабов Г. А., Елисеев В. В.* Спектроскопические таблицы для низкотемпературной плазмы. М., Атомиздат, 1973.
9. *Стриганов А. Р., Свентицкий Н. С.* Таблицы спектральных линий нейтральных и ионизованных газов. М., Атомиздат, 1966.
10. *Irvin J. G., Livingston A. E., Kernahan J. A.* Beam-foil lifetimes in the third period elements silicon, sulfur and argon in vacuum ultraviolet.— «Nucl. Instrum. and Meth.», 1973, vol. 110, p. 111—117.
11. *Wiese W. L., Smith M. W., Glennon B. M.* Atomic Transition Probabilities. ol. 1, 1966.

УДК 533.7

ДИФфуЗИЯ В МНОГОКОМПОНЕНТНЫХ СМЕСЯХ ГАЗОВ В МОДЕЛИ ЛОКАЛЬНОГО ТЕРМОДИНАМИЧЕСКОГО РАВНОВЕСИЯ

Г. А. Павлов, Э. Е. Сон

(Москва)

В модели локального термодинамического равновесия рассмотрена диффузия химических элементов в ионизованной многокомпонентной смеси газов. Получена линейная зависимость массовых потоков химических элементов и теплового потока от градиентов температуры, массовых долей химических элементов и электрического поля. Приведен пример расчета эффективных коэффициентов диффузии для смеси водорода с гелием.

Решение гидродинамических задач для многокомпонентного газа или плазмы при наличии химических реакций, идущих с конечными скоростями, является сложной проблемой. Поэтому большинство из них