

УДК 533.6.011.8+536.423.4+544.277.4+544.277.6

Особенности регистрации кластеров в сверхзвуковых недорасширенных струях методом молекулярно-пучковой масс-спектрометрии

А.Е. Зарвин, В.В. Каляда, В.Э. Художитков

Новосибирский государственный университет

E-mail: zarvin@phys.nsu.ru

Выполнены измерения структуры кластированных сверхзвуковых недорасширенных струй молекулярного азота и аргона методом молекулярно-пучковой масс-спектрометрии. Обнаружены, идентифицированы и изучены особенности использования молекулярно-пучковых методов регистрации сверхзвуковых струй разреженных газов в условиях слабой и развитой конденсации, т.е. в присутствии малых и больших кластеров в струях. Выявлена и объяснена необычная форма продольных и поперечных сечений кластированных сверхзвуковых струй при сканировании молекулярно-пучковой системой. Установлено, что источником присутствующих вблизи оси потока двукратно ионизованных мономеров, а также ионов димеров на ранних стадиях конденсации являются малые кластеры и мономеры, тогда как в присутствии в потоке кластеров большого размера доминирует иной механизм формирования таких ионов. Предложен маркер фиксации стадии образования в сверхзвуковом потоке кластеров малого размера.

Ключевые слова: сверхзвуковая струя, молекулярный пучок, конденсация, кластерообразование, масс-спектрометрия, ионизация кластеров.

Процесс формирования сверхзвуковых струй, истекающих из так называемых «звуковых» и «сверхзвуковых» сопел в пространство с низким давлением, хорошо изучен в широком диапазоне чисел Рейнольдса Re_* и Re_L [1–6]. Тем не менее влиянию конденсации на структуру таких струй, в особенности при высоких степенях нерасчетности, до сих пор не было уделено достаточного внимания [7–9]. В работе [10] было установлено, что в условиях интенсивной кластеризации форма и структура сверхзвуковых струй претерпевают заметные изменения. В качестве примера на рис. 1 приведены фотографии сверхзвуковых струй слабо конденсирующегося молекулярного азота (левый снимок) и интенсивно конденсирующегося аргона (правый снимок) при истечении из одного и того же сопла при одинаковых условиях торможения (температуре $T_0 = 297$ К и давлении $P_0 = 0,5$ МПа), заимствованные из неопубликованных ранее материалов этой работы. Сверхзвуковые струи, представленные на рис. 1, наблюдались при истечении из сверхзвукового сопла с геометрическими характеристиками $d_* = 0,17$ мм, $L = 8,2$ мм, $D = 2,4$ мм в вакуумную камеру с давлением фона $P_h = 7,1$ Па для азота и $P_h = 7,6$ Па для аргона. Фотографии струй были сделаны через оптическое окно в камере установки «Плазмохимический модуль» отдела прикладной физики НГУ [11] при возбуждении

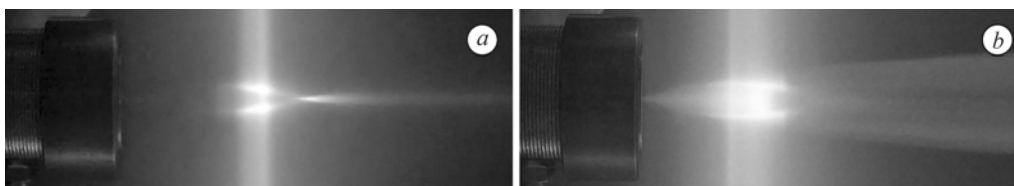


Рис. 1. Визуализация сверхзвуковых струй азота (а) и аргона (b) при одинаковом давлении торможения $P_0 = 0,5$ МПа.

свечения истекающих струй специально расфокусированным электронным пучком с энергией 8 кэВ. Более яркому свечению на фотографиях соответствуют участки с большей плотностью газа с учетом, конечно, распределения в пространстве плотности электронов вблизи от среза сопла в зоне смешения, в области смыкания боковых висячих скачков уплотнения. Нетрудно видеть, что различия в форме и структуре струй на приведенных снимках значительны. Структура струи азота в целом традиционна, в то время как в аргоне структура струи заметно иная. Поскольку при истечении аргона с выбранными параметрами торможения имеет место развитая конденсация, было высказано предположение, что причиной необычной формы струи является влияние кластеров большого размера [10].

Для изучения процессов, протекающих в струе в условиях интенсивного кластерообразования, в настоящей работе проведены измерения, использующие традиционную методику молекулярно-пучковой масс-спектрометрии (см., например, [12–15]). Измерения выполнены на стенде ЛЭМПУС-2 отдела прикладной физики НГУ [16]. Следствием ограниченности откачной способности вакуумных насосов на вакуумной установке является вынужденное ограничение расхода газа через сопло в непрерывном режиме истечения, пропорционального, как известно, $P_0 d_*^2$, где d_* — диаметр критического сечения сопла. Поэтому для достижения давлений торможения, обеспечивающих условия конденсации, описываемые параметром $P_0 d_*^\alpha$ (где $\alpha < 1$) [17], диаметр критического сечения сопла как для звуковых, так и для сверхзвуковых сопел уменьшался до минимально возможного, вплоть до $d_* = 0,1$ мм. Изготовление скиммеров молекулярно-пучковой системы малого размера является сложной технической задачей [18, 19]. Поэтому в работе использовались скиммеры с диаметрами входного сечения d_s , составляющими не менее 0,4 мм. Вследствие этого молекулярный пучок, вырезаемый на начальных участках исследуемых струй, искажался скиммерным взаимодействием [20]. В то же время структура струи вблизи замыкающего диска Маха или смыкания боковых висячих скачков уплотнения (X-образная конфигурация), как правило, размывалась из-за проникновения внутрь струи фоновых газа окружающего пространства ($Re_L \ll 100$) [21].

При фиксированных геометрических параметрах молекулярно-пучковой системы (диаметр скиммера, расстояние скиммер–детектор) продольный профиль плотности мономерной компоненты струи, регистрируемый на оси молекулярного пучка с помощью масс-спектрометра, имел вид, приведенный на рис. 2: 1 — в струе гелия (рис. 2а), 2 — в струе азота (рис. 2б) и 5 — в струе аргона (рис. 2с) (на рисунке и далее n_b — плотность числа частиц в относительных единицах, регистрируемая масс-спектрометром в молекулярном пучке). Геометрия молекулярно-пучкового тракта организована таким образом, что телесный угол, внутри которого частицы газового потока, пересекающие входное сечение скиммера, попадают на вход детектора масс-спектрометра, не превышает $7 \cdot 10^{-6}$ стерадиан. Отметим, что при выбранных температуре (295–297 К) и давлении (0,4 МПа) торможения, с тем же сверхзвуковым соплом, что и на рис. 1, средний размер кластеров,

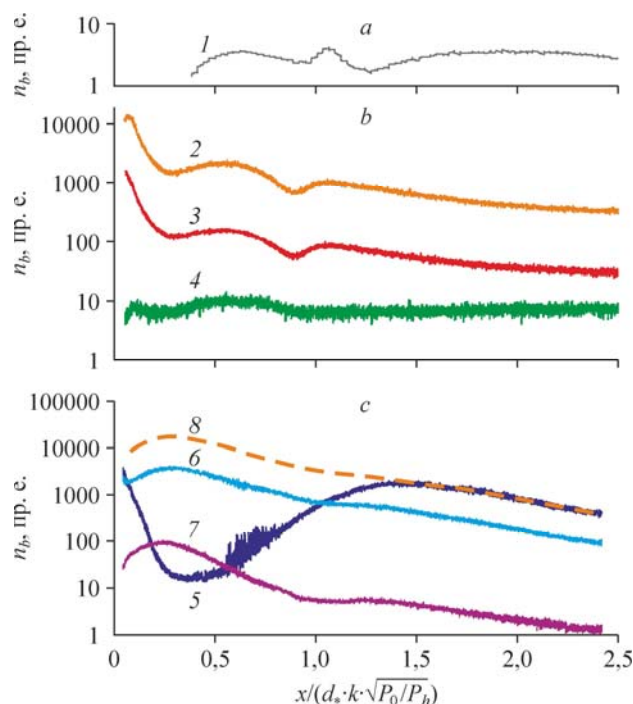


Рис. 2. Продольные профили плотности мономерной компоненты в струе гелия (1), азота (2), аргона (5) и димерной компоненты в струе азота (4) и аргона (7), а также двукратно ионизованных мономеров в струе азота (3) и аргона (6), измеренные в молекулярном пучке.

Описание кривой 8 будет приведено далее в тексте.

рассчитанный по формулам работы [22], в азоте составил порядка 20, тогда как в аргоне — около 1300. Гелий в условиях настоящих экспериментов не конденсировался. На рисунке помимо данных для мономерной компоненты приведены также данные для димерной компоненты в струях азота $(N_2)_2^+$ (4) и аргона Ar_2^+ (7). Также предпринималась попытка зарегистрировать кластеры большего размера — до 25 м в аргоне и до 35 м в азоте. Однако регистрация кластеров размерами более 5 м не удалась из-за низкой интенсивности кластерных сигналов и высокого уровня шума.

Согласно критериям, предложенным в работах [23, 24], размер струи до диска Маха может быть описан выражением $x/d_* = k(P_0/P_h)^{0,5}$, где k — коэффициент, в общем случае зависящий от сорта газа, числа Маха на выходном срезе сопла и условий конденсации [10]. Поэтому для удобства сравнения форм струй разных газов плотность на оси потока на рис. 2 приведена в произвольных единицах в зависимости от безразмерной координаты $x/(d_*k\sqrt{P_0/P_h})$, причем значения коэффициента k взяты из литературных источников [2, 10, 23]. Для неконденсирующегося гелия (1) и слабо конденсирующегося азота форма продольных профилей мономерной (2) и димерной (4) компонент имеет вполне традиционный вид [25, 26].

Иная картина наблюдается в хорошо конденсирующемся аргоне. Амплитуда димерной компоненты (7) растет почти от среза сопла — значительно ранее, чем в азоте, — проходит через максимум и далее снижается вплоть до расстояния, соответствующего смыканию боковых скачков уплотнения. В дальнейшем, после незначительного роста в области X-образной конфигурации, она снижается по степенному закону. Амплитуда мономерной компоненты (5) очень резко, более чем на два порядка, падает, проходит через

минимум несколько позднее максимума димеров и затем растет вплоть до расстояний далеко за областью смыкания боковых скачков уплотнения. Далее она проходит через достаточно плавный максимум и снижается практически эквидистантно димерной компоненте.

Интересным представляется изменение амплитуды двукратно ионизованных мономеров. Для азота N_2^+ (2) и N_2^{++} (3) измерения практически во всем диапазоне дают эквидистантные зависимости (рис. 2b), причем интенсивность сигнала на массе иона мономера приблизительно на порядок превышает сигнал двукратно ионизованного азота. Следует подчеркнуть, что на массе $m/2e$ вследствие диссоциативной ионизации присутствует сигнал не только от двукратно ионизованных молекул азота, но и от однократно ионизованных атомов. В то же время в аргоне (рис. 2c) изменение амплитуды двукратно ионизованного мономера (5) подобно изменению амплитуды иона димера (7), причем в пределах первой бочки значительно, вплоть до двух порядков, превышает амплитуду иона мономера аргона, что совершенно не соответствует реальным условиям в струе. Только вниз по потоку далеко за пределами первой бочки сигнал мономерной составляющей Ar^+ ложится на зависимость, эквидистантную двукратно ионизованному аргону, с примерно пятикратным превышением амплитуды m/e (5) над амплитудой $m/2e$ (6). Зарегистрированные зависимости Ar^+ , Ar^{++} , Ar_2^+ от расстояния не могли получить объяснения в рамках традиционных представлений и потребовали тщательного рассмотрения.

Определение изменений плотности в струях азота и аргона поперек оси потока методом молекулярно-пучковой масс-спектрометрии было опробовано в трех вариантах. Первый — при перемещении сопла поперек оси молекулярно-пучковой системы (по координате y) на выбранных фиксированных расстояниях сопло–скиммер. Вторым — при изменении угла поворота соплового блока относительно оси молекулярно-пучковой системы без изменения координат x и y . Координата x — размерное расстояние (x/d — безразмерное) вдоль оси потока от передней кромки сопла до точки измерения, в данном случае — до входного сечения скиммера, являющегося плоскостью последних столкновений частиц в струе. Эта величина присутствует на рис. 2, 4 и 8 в составе безразмерного параметра, при использовании которого струи для любых газов имеют одинаковый размер. Координата y — расстояние поперек оси потока, т.е. от оси x в перпендикулярном направлении (вправо или влево). Третий вариант — при одновременном изменении угла поворота соплового блока и координаты y таким образом, чтобы центр отверстия выходного среза сопла находился на оси молекулярно-пучковой системы «скиммер–коллиматор–детектор». В каждом из этих вариантов детектором молекулярно-пучковой системы регистрировались данные по плотности частиц газового потока на входном срезе скиммера, вектор скорости которых находился в пределах геометрического телесного угла детектора. Все способы имели свои недостатки. Поскольку кластеры в сверхзвуковой струе составляют малую часть общего потока по сравнению с мономерами, можно предположить незначительное отличие направленных скоростей и локальных поступательных температур мономеров и кластеров [27, 28]. Следовательно, основное различие в величинах скоростного отношения $S = W/(2kT/m)^{0,5}$ (где W — направленная (гидродинамическая) скорость потока, k — постоянная Больцмана, T — локальная поступательная температура, m — масса частиц) для мономеров и кластеров зависит от корня из отношения их масс. В соответствии с этим угол разлета больших кластеров при бесстолкновительном пролете высоковакуумных камер молекулярно-пучковой системы оказывается значительно меньше, чем у мономеров, и при совпадении осей струи и молекулярно-пучковой системы детектора, размещенного на достаточном удалении от скиммера, достигают преимущественно кластеры. Отметим, что в случае, когда давление фонового газа в камерах молекулярно-пучковой системы недостаточно низкое для бесстолкновительного пролета частиц до детектора, разлет мономеров от оси по сравнению с кластерным получается еще больше.

Несмотря на большое количество столкновений можно считать, что в среднем в гиперзвуковой струе частицы газа двигаются по линиям тока, направленным из некоторого мнимого источника [29]. Входная плоскость скиммера приближенно является поверхностью последних столкновений частиц струи, начиная с которой эпюра разлета частиц зависит от угла наклона выбранной линии тока и величины скоростного соотношения в этой плоскости. Точное определение мнимого источника линий тока для реальных сверхзвуковых сопел затруднительно. Поэтому любой из вышеперечисленных вариантов сканирования струи относительно молекулярно-пучковой системы в большей или меньшей мере приводит к несовпадению оси выбранной линии тока с осью молекулярного пучка. В этом случае различие в величине скоростного отношения тяжелых (кластеры большого размера) и легких (мономеры) частиц приводит к попаданию на масс-спектрометр тем меньшего числа тяжелых кластеров, чем больше угол наклона выбранной линии тока относительно оси молекулярно-пучковой системы. В то же время в десятки раз меньшая величина скоростного отношения мономеров и олигомеров обеспечивает значительно больший угол разлета частиц.

Следует отметить, что несмотря на различие в геометрии рассматриваемых вариантов вследствие узкой направленности сверхзвуковых потоков при истечении из использованных в работе сверхзвуковых сопел и выполнении измерений в основном в дальних сечениях струй (для минимизации влияния скиммерного взаимодействия при формировании молекулярного пучка) в качественном отношении различие в результатах, полученных описанными тремя способами, оказалось несущественным. Поэтому, исходя из практических соображений максимальной надежности воспроизведения режимов, в текущей работе был использован первый вариант.

Пример измерения поперечного профиля плотности мономеров (N_2^+ , $m/e = 28$) и димеров ($(N_2)_2^+$, $m/e = 56$) в струе азота в зависимости от расстояния до оси y (в мм) при фиксированном давлении торможения $P_0 = 0,4$ МПа для нескольких расстояний от входного среза сопла, приведенных в безразмерных величинах $x/(d_*\sqrt{P_0/P_h})$, представлен на рис. 3а и 3б соответственно. Детектором являлся квадрупольный масс-спектрометр. Несмотря на низкий уровень значений Re_L ($Re_L = 20$) и, соответственно, размытые боковые скачки уплотнения с широкой зоной смешения, поперечные профили мономера молекулярного азота (рис. 3а) имеют вид, мало отличающийся от регистрировавшихся ранее во многих работах (см., например, [2]). Отметим, что, несмотря на малые размеры и неизбежные трудности в изготовлении сверхзвуковых сопел малого размера, струя получилась практически симметричной.

Минимальное расстояние от среза сопла, на котором был зарегистрирован поперечный профиль, составило примерно 0,2 (дальнейшее приближение к соплу из-за роста потока газа через скиммер приводило

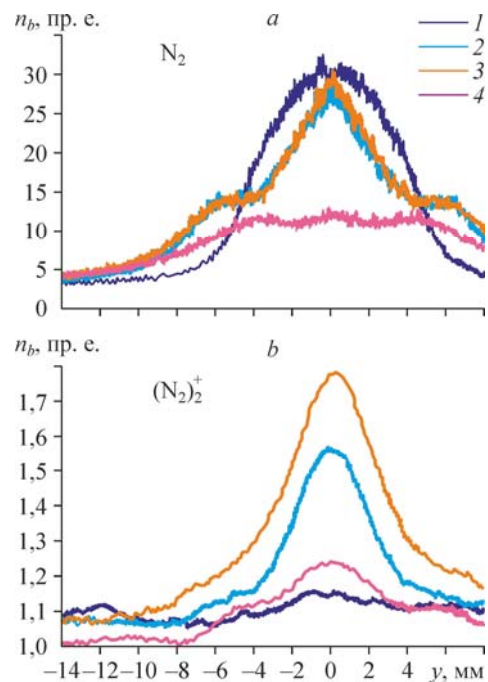
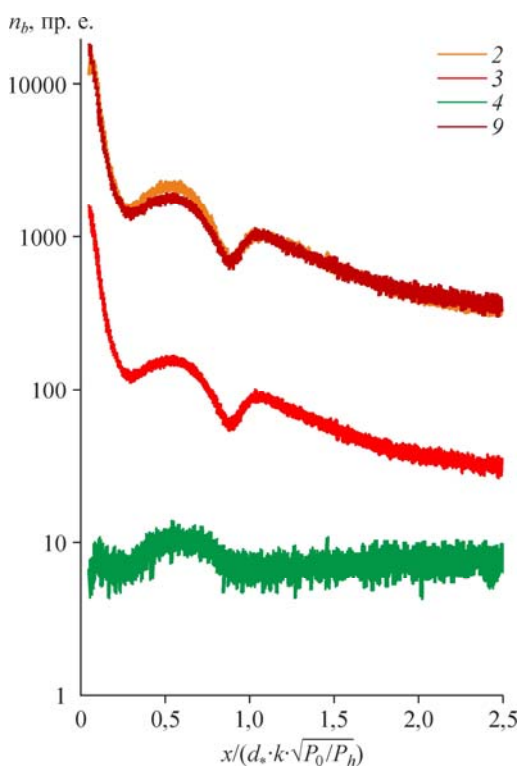


Рис. 3. Поперечный профиль мономера (а) и димера (б) азота на безразмерных расстояниях сопло–скиммер, равных 0,2 (1), 0,4 (2), 0,6 (3) и 0,8 (4).

к неустойчивой работе вакуумных насосов послескиммерной секции молекулярно-пучковой системы). На этом расстоянии вследствие сильного скиммерного взаимодействия поперечный профиль мономеров имеет практически гауссовскую форму и характеризует форму потока, формирующегося в послескиммерной секции после прохождения через ударную волну перед скиммером. Мало отличающийся от шума пик димеров, источником которых являются кластеры струи, свидетельствует о сильном рассеянии частиц струи на газовой подушке перед скиммером. Вниз по потоку, на расстояниях 0,4 и 0,6 поперечные профили плотности мономеров, как и следовало ожидать исходя из измерений продольных профилей, имеют практически совпадающую амплитуду на оси и слабо выраженные боковые скачки уплотнения. Несколько неожиданным является почти полное совпадение формы поперечных профилей на этих расстояниях, поскольку на расстоянии 0,4 еще оказывает влияние скиммерное взаимодействие (амплитуда пиков димеров на расстоянии 0,6 выше, чем на 0,4, несмотря на падение плотности частиц в самой струе), тогда как на расстоянии 0,6 оно ослабевает. Следует отметить, что полуширина поперечных профилей димеров сопоставима с мономерной. Присутствие в струе кластеров со средним размером около 25 [22] привело к увеличению продольного размера струи [10] так, что на расстоянии 0,8 все еще присутствует структура первой «бочки» с поджатыми боковыми скачками уплотнения, слабо выраженными из-за проявления эффекта проникновения в струю фонового газа. Наблюдается также сравнительно большой пик димеров.

Несмотря на малую амплитуду границы области регистрации на оси струи димеров (рис. 2*b*, кривая 4) могут быть определены с достаточной точностью. Димеры регистрируются начиная с безразмерного расстояния вдоль оси струи, равного 0,2, т.е. в той области струи, когда начинается рост мономеров азота, и заканчивая расстоянием примерно 0,9, т.е. зоной смыкания боковых скачков уплотнения, вызывающих рост плотности мономеров. Таким образом, кластерная составляющая струи азота практически полностью дефрагментируется в зоне X-образной конфигурации струи.



Зависимость от расстояния (кривая 3 на рис. 2*b*) двукратно ионизованных мономеров молекул азота (N_2^{++}) с учетом возможного вклада в сигнал продукта диссоциативной ионизации (N^+) почти полностью эквидистантна зависимости однократно ионизованных мономеров молекулярного азота (N_2^+ , кривая 2). Этот результат можно наблюдать на рис. 4 (обозначение номеров кривых то же, что и на рис. 2) при совмещении кривых 2 и 3 путем домножения данных зависимости (3) на постоянный коэффициент 11,6, определенный в дальнем поле течения на безразмерном расстоянии 1,75 (кривая 9).

Рис. 4. Продольные профили плотности мономерной (2) и димерной (4) компоненты, а также двукратно ионизованных мономеров (3) в струе азота, измеренные в молекулярном пучке.

Кривая 9 является продольным профилем двукратно ионизованных мономеров при домножении на коэффициент 11,6; обозначения 2–4 см. на рис. 2.

В области сильного скиммерного взаимодействия (расстояние вдоль оси потока от 0,1 до 0,3), а также смыкания боковых скачков (расстояние 0,9–1,1) кривые 2 и 9 практически полностью совпадают. По-видимому, на этих расстояниях одно- и двукратно ионизованных манометры азота N_2^+ и N_2^{++} (кривые 2 и 3 соответственно) явились продуктом одного процесса: ионизации мономеров, достигших детектора масс-спектрометра через молекулярно-пучковую систему. В диапазоне расстояний от 0,3 до 0,9, когда регистрируются димеры, амплитуда сигналов кривой 2 превышает данные кривой 9, что свидетельствует о дополнительном вкладе малых кластеров в амплитуду N_2^+ . В приведенных результатах средний размер кластеров в потоке азота невелик (как было указано выше, он равен 25 при $P_0 = 0,4$ МПа). В исследованиях [30–32] было показано, что кластеры небольших размеров, олигомеры, при ионизации распадаются преимущественно на мономеры и, частично, димеры. В то же время вероятность образования двукратно ионизованных кластеров малых размеров мала [33].

Таким образом, отклонение от эквидистантности кривых 2 (N_2^+) и 3 (N_2^{++}) является маркером образования в потоке молекулярного азота кластеров малого размера. Регистрация в молекулярном пучке димеров подтверждает способность кластеров даже небольшого размера более эффективно преодолевать газовую подушку проникающих из фона и рассеянных скиммером мономеров. Этот факт подтверждает также регистрация слабого пика димеров в поперечном профиле на расстоянии от сопла, равном 0,2.

Иная картина течения зарегистрирована в струе аргона. На рис. 5 приведен зарегистрированный молекулярно-пучковой системой поперечный профиль плотности в струе азота 1 в сравнении с аналогичным профилем в аргоне 2. Данные получены при давлении торможения $P_0 = 0,4$ МПа и одинаковом уровне фона $P_h = 1,5$ Па на фиксированном безразмерном расстоянии сопло–скиммер ($x/(d_*\sqrt{P_0/P_h}) = 0,4$) при истечении через одно и то же сверхзвуковое сопло. Для удобства сопоставления амплитуды сигналов приведены к одинаковым величинам в боковых локальных максимумах. Как видно из сравнения кривых 1 и 2, струя в азоте более поджата к оси, что совпадает с данными из литературы. Однако на узком приосевом участке струи аргона регистрируется резкий рост амплитуды сигнала, который в непосредственной близости к оси сменяется еще более резким падением. Падение плотности настолько значительно, что амплитуда мономерной компоненты на оси оказывается меньше амплитуды димерной компоненты ($m/e = 80$), также изображенной на рисунке (кривая 3). Этот результат вполне согласуется с приведенными на рис. 2 данными продольных профилей плотности. Заметим, что пик димерной компоненты столь же узкий, как и у мономерной, хотя не имеет центрального

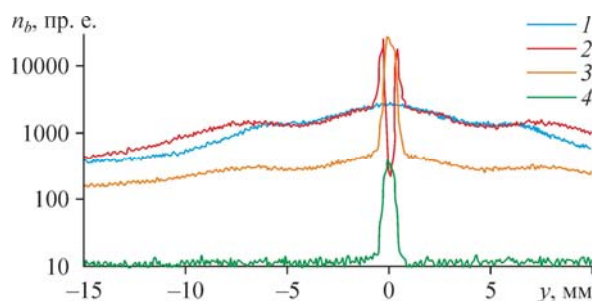


Рис. 5. Поперечный профиль мономеров азота (1), мономеров (2) и димеров (3) аргона, а также двукратно ионизованных мономеров аргона (4) на расстоянии 0,4 между соплом и скиммером.

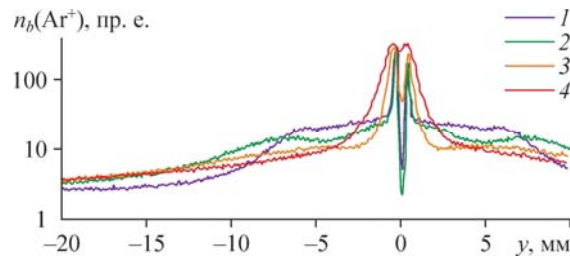


Рис. 6. Поперечный профиль мономеров аргона на расстояниях сопло-скиммер, равных 0,2 (1), 0,4 (2), 0,6 (3) и 0,8 (4).

провала. Подобная аномалия наблюдалась и на других измеренных поперечных профилях плотности в аргоне, полученных на расстояниях как ближе к соплу, так и вниз по потоку, это видно из рис. 6, где представлены данные для мономеров аргона ($m/e = 40$). Однако полуширины как центрального пика, так и провала, примерно одинаковые на расстояниях 0,2 и 0,4, заметно увеличиваются на расстояниях 0,6 и 0,8, причем на расстоянии 0,8 центральный провал едва заметен. Аналогичные результаты получены в аргоне и на других сверхзвуковых соплах, а также при других давлениях торможения, однако только в случае, когда процесс формирования струй сопровождался интенсивной конденсацией, при среднем размере кластеров много больше 100.

Иной вид имеют зависимости поперечных профилей плотности димеров и двукратно ионизованных частиц, приведенные на рис. 7а и 7b соответственно. Эти данные представлены в относительных единицах. Следует учитывать, что реальная величина сигналов двукратно ионизованных частиц более чем на порядок превышает димерную, что видно из рис. 2. Можно было ожидать, что изменение амплитуд этих сигналов будет происходить как и в струе азота, аналогично изменению однократно ионизованных

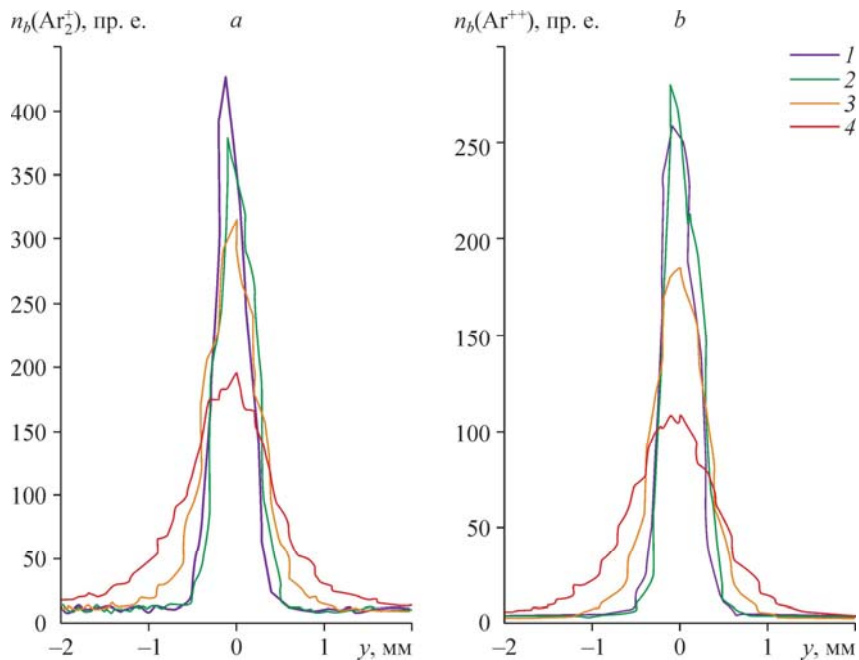
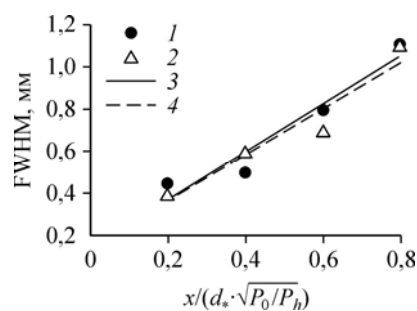


Рис. 7. Поперечный профиль димеров (а) и двукратно-ионизованных мономеров (б) аргона на расстояниях сопло-скиммер, равных 0,2 (1), 0,4 (2), 0,6 (3) и 0,8 (4).

Рис. 8. Зависимость полуширины пиков (FWHM) Ar^{++} (1) и Ar_2^+ (2) от безразмерного расстояния сопло–скиммер.

Прямые — линейные аппроксимации экспериментальных данных для Ar^{++} (3) и Ar_2^+ (4).



мономеров. Однако, как видно из приведенных графиков, максимальная амплитуда пиков Ar_2^+ и Ar^{++} приходится на ось струи, полуширины обоих сигналов на разных расстояниях от сопла примерно одинаковы (см. рис. 8) и линейно увеличиваются в пределах первой «бочки» струи с удалением от сопла.

Чтобы объяснить обнаруженную закономерность, следует учесть, что в струе молекулярного азота источником сигналов ионов димеров, одно- и двукратно ионизованных мономеров при молекулярно-пучковой масс-спектрометрической регистрации являются мономеры и кластеры небольших размеров. В приведенных режимах в струе азота димерная компонента сигнала мала. Сигналы мономеров, как одно-, так и двукратно ионизованных, определяются в основном потоком мономеров и соотносятся примерно как 11:1 (см. рис. 2, кривые 2 и 3). Тем не менее наличие кластеров в центральной области струи азота приводит к их деструкции на ионизаторе масс-спектрометра, что характеризуется ростом амплитуды N_2^+ в приосевой области, придающим зависимости поперечного профиля (рис. 3) остроугольную форму.

В потоке аргона характер изменения кривых одно- и двукратно ионизованных мономеров, а также димеров становится подобным только в дальнем следе струи, вниз по потоку от X-образной конфигурации замыкающих первую бочку скачков уплотнения, на безразмерных расстояниях, больше 1,0 (рис. 2с, кривые 5–7), где происходит постепенное уменьшение размера кластеров вследствие большого числа столкновений с окружающим фоновым газом.

Однако остается невыясненной причина полученного вида зависимостей Ar^{++} и Ar_2^+ . Можно было бы ожидать, что в узкой центральной области потока аргона также будет регистрироваться провал этих сигналов. Вернемся к рассмотрению поперечных профилей плотности, приведенных на рис. 5. Кривая 4 соответствует изменению амплитуды двукратно ионизованного аргона. Совмещая зависимости Ar^+ и Ar^{++} способом, аналогичным использованному при обсуждении на рис. 4 данных по азоту, легко убедиться, что резкий рост амплитуд одно- и двукратно ионизованных мономеров аргона практически идентичен на «крыльях» пика, однако рост Ar^+ вблизи оси сменяется резким падением, тогда как амплитуда Ar^{++} продолжает расти и достигает максимума на оси струи. Проецируемая таким образом зависимость продольного профиля Ar^{++} (кривая 8 на рис. 2с) вблизи оси превышает амплитуду Ar^+ примерно на три порядка.

На других расстояниях от сопла характер зависимостей поперечных профилей плотности Ar^{++} аналогичен и также соответствует изменению зависимостей Ar^+ , за исключением приосевой зоны. Следовательно, источником двукратно ионизованных атомов аргона в узкой приосевой зоне не могут быть только мономеры или малые кластеры аргона. Тот же фактор, по-видимому, определяет и особенности изменения зависимостей Ar_2^+ . Следует искать механизмы и источник такого отличия с учетом резкой угловой дифференциации в структуре потока.

Формирование в струе больших кластеров приводит вследствие газодинамического разделения по массам к накоплению тяжелых частиц вблизи оси осесимметричного потока и соответственно к вытеснению с оси легких кластеров и мономеров. Причем с ростом давления торможения и пропорциональным ростом плотности истекающего газа растет предельное число столкновений в струе при расширении, а с ним и предельный размер кластеров, и эффективность разделения по массам. Хорошо известно, что максимальная доля конденсата в сверхзвуковом потоке не превышает 30 % от общей массы газа, причем в дальнем поле течения при достаточном числе столкновений и высокой эффективности кластерообразования значительную роль играют механизмы коагуляции и, возможно, коалесценции. Следует также учитывать, что регистрируемые в проводимых экспериментах ионы мономеров и димеров являются не только первичными элементами потока, но также продуктами деструкции кластеров при их ионизации в масс-спектрометре. Отметим также, что олигомеры при ионизации распадаются преимущественно на мономеры и, частично, димеры, тогда как большие кластеры фрагментируют на крупные осколки [34]. Нельзя забывать также о том, что регистрация кластерного потока происходит не в самом потоке, а в вырезанном из него молекулярном пучке, где плотность существенно зависит не только от плотности в струе, но и от квадрата скоростного отношения, существенно отличающегося для мономеров и кластеров. Крайне важна также специфика измерений поперечных профилей плотности с помощью молекулярно-пучковой системы, о чем говорилось выше.

Учитывая все вышеперечисленные факторы, следует предположить, что узкая приосевая зона поперечного профиля плотности в струе аргона, регистрируемая как провал мономерной компоненты, состоит преимущественно из крупных кластеров и их больших осколков. К сожалению, используемый масс-спектрометр не позволяет регистрировать кластеры большого размера. Вниз по потоку при интенсивном процессе столкновений кластеров с проникающими в струю мономерами фона размер кластеров постепенно уменьшается, в то время как доля мономеров на оси возрастает. В то же время периферийная часть центральной области струи (кольцевая зона резкого роста амплитуды мономерного сигнала) состоит из кластеров среднего и малого размера. Поэтому можно сделать вывод, что компоненты Ar^{++} и Ar_2^+ при измерениях в молекулярном пучке формируются преимущественно из мономеров и малых кластеров, тогда как вблизи оси и на оси — из кластеров большого размера.

Разность значений кривых 8 и 5 на рис. 2с вблизи оси струи позволяет грубо оценить эффективность вытеснения мономеров с оси струи аргона, а также установить область максимальной доли больших кластеров в потоке. Острота пика мономеров и масштаб его изменения вблизи оси струи аргона иллюстрирует принципиальную важность высокой точности совпадения осей сверхзвуковой струи и молекулярно-пучковой регистрирующей системы, а также принципиальную важность телесного угла, внутри которого частицы, проходящие скиммер, попадают в апертуру детектора. Измерения поперечных профилей плотности кластеризованных потоков позволяют оценить влияние кластерной компоненты на структуру и газодинамику сверхзвуковых недорасширенных струй.

Авторы благодарят А.С. Яскина за подбор фотографических данных течений аргона и азота и полезные дискуссии, М.Д. Ходакова за участие в проведении экспериментов.

Работа выполнена с использованием оборудования Центра коллективного пользования «Прикладная физика» физического факультета НГУ.

Список литературы

1. **Ребров А.К.** О газодинамической структуре высоконапорных струй низкой плотности // Проблемы теплофизики и физической гидрогазодинамики. Новосибирск: Наука, 1974. С. 262–276.
2. **Кисляков Н.И., Ребров А.К., Шарафутдинов Р.Г.** О структуре высоконапорных струй низкой плотности за сверхзвуковым соплом. // Прикладная механика и техническая физика. 1975. № 2. С. 42–52.
3. **Дулов Г., Лукьянов Г.А.** Газодинамика процессов истечения. Новосибирск: Наука, 1984. 224 с.
4. **Герасимов Ю.И., Ярыгин В.Н.** Истечение струй идеального и реальных газов из осесимметричных сопел. Вопросы подобия 2. Истечение в затопленное пространство // Физико-химическая кинетика в газовой динамике. 2012. Т. 1. <http://www.chemphys.edu.ru/pdf/2012-11-22-001.pdf>
5. **Sanna G., Tomassetti G.** Introduction to molecular beams gas dynamics // London: Imperial College Press, 2005, 379 p.
6. **Even U.** Pulsed supersonic beams from high pressure source: simulation results and experimental measurements // Advan. in Chem. 2014. Vol. 2014. Article ID 636042. 11 p.
7. **Смирнов Б.М.** Процессы в расширяющемся и конденсирующемся газе // Успехи физических наук. 1994. Т. 164, № 7. С. 665–703.
8. **Hagena O.F., Obert W.** Cluster formation in expanding supersonic jets: effect of pressure, temperature, nozzle size, and test gas // J. Chem. Phys. 1972. Vol. 56, No. 5. P. 1793–1802.
9. **Zischang J., Suhm M.A.** Infrared absorption imaging of 2D supersonic jet expansions: free expansion, cluster formation, and shock wave patterns // J. Chem. Phys. 2013. Vol. 139, No. 2. P. 024201-1–024201-5.
10. **Зарвин А.Е., Яскин А.С., Каляда В.В., Ездин Б.С.** О структуре сверхзвуковой струи в условиях развитой конденсации // Письма в ЖТФ. 2015. Т. 41, вып. 22. С. 74–81.
11. **Зарвин А.Е., Каляда В.В., Яскин А.С., Ходаков М.Д., Коробейщиков Н.Г., Художитков В.Э., Мадирбаев В.Ж., Ездин Б.С.** Экспериментальная установка для плазмохимических исследований // Приборы и техника эксперимента. 2016. № 6. С. 50–56.
12. **Green F.T., Milne T.A.** Mass-spectrometric detection of polymers in supersonic molecular beams // J. Chem. Phys. 1963, Vol. 39, No. 11. P. 3150–3151.
13. **De Martino A., Benslimane M., Châtelet M., Crozes C., Pradère F., Vach H.** Average cluster size determination in supersonic beams from angular distribution measurements after scattering by a buffer gas // Zeitschrift für Physik D. Atoms, Molecules and Clusters. 1993. Vol. 27, No. 2. P. 185–192.
14. **Ходорковский М.А., Артамонова Т.О., Мурашов С.В., Michael D., Ракчеева Л.П., Беляева А.А., Тимофеев Н.А., Мельников А.С., Шахмин А.Л.** Исследование состава смеси паров воды с аргоном методом масс-спектрометрии сверхзвукового молекулярного пучка // Журнал технической физики. 2007. Т. 77, № 10. С. 16–23.
15. **Even U.** Pulsed supersonic beams from high pressure source: simulation results and experimental measurements // Advan. In Chem. 2014. Vol. 2014. Article ID 636042. 11 p.
16. **Ходаков М.Д., Зарвин А.Е., Коробейщиков Н.Г., Каляда В.В.** Масс-спектрометрия сверхзвуковых кластеризованных потоков метана и аргон-метановых смесей // Вестник НГУ: Серия «Физика». 2012. Т. 7, вып. 3. С. 84–95.
17. **Golomb D., Good R.E., Bailey A.B., Busrby M.R., Dawbarn R.** Dimers, clusters, and condensation in free jets // J. Chem. Phys. 1972. Vol. 57, No. 9. P. 3844–3852.
18. **Marceca E., Becker J.A., Hensel F.** Valved molecular beam skimmer // Rev. Sci. Instrum. 1997. Vol. 68, No. 8. P. 3258–3259.
19. **Jordan D.C., Barling R., Doak R.B.** Refractory graphite skimmers for supersonic free-jet, supersonic arc-jet, and plasma discharge applications // Rev. Sci. Instrum. 1999. Vol. 70, No. 3, P. 1640–1648.
20. **Зарвин А.Е., Шарафутдинов Р.Г.** О формировании сверхзвуковых молекулярных пучков с помощью скиммера // Прикладная механика и техническая физика. 1979. № 6. С. 107–115.
21. **Кисляков Н.И., Ребров А.К., Шарафутдинов Р.Г.** Диффузионные процессы в зоне смешения сверхзвуковой струи низкой плотности // Прикладная механика и техническая физика. 1973. № 1. С. 121–127.
22. **Hagena O.F.** Nucleation and growth of clusters in expanding nozzle flows // Surf. Sci. 1981. Vol. 106, Iss. 1. P. 101–116.
23. **Ashkenas H.Z., Sherman P.S.** The structure and utilization of supersonic free jets in low density wind tunnels // Rarefied Gas Dynamics. 4-th Internat. Symp. Proc. Vol. 2. N.Y., London: Acad. Press, 1966.
24. **Авдеевский В.С., Иванов А.В., Карпман И.М., Трасковский Ю.Д., Юделович М.Я.** Течения в сверхзвуковой вязкой недорасширенной струе // Изв. АН СССР. Механика жидкости и газа. 1970. Т. 5, № 3. С. 63–69.
25. **Bossel U.** On the optimization of skimmer geometries // Entropie. 1971. Vol. 42. P. 12–18.
26. **Zarvin A.E., Sharafutdinov R.G.** Measurement of the parameters of a molecular beam in the presence of residual gas // Fluid Mech. Sov. Res. 1977. Vol. 6. No. 5. P. 91–99.
27. **Skovorodko P.A.** The peculiarities of condensation process in conical nozzle and in free jet behind it // Rarefied Gas Dynamics: 13th Intern. Symp. / ed. by O.M. Belotserkovskii, M.N. Kogan, S.S. Kutateladze, A.K. Rebrov // Plenum Press. 1985. Vol. 2, P. 1053–1061.

28. **Korobeishchikov N.G., Penkov O.I.** Simple method to gas cluster size determination based on molecular beam cross-section // *Vacuum*. 2016. Vol. 125, No. 3. P. 205–208.
29. **Сковородко П.А.** Два подхода к моделированию течения в заопленной струе // *Матем. моделирование*. 2003. Т. 15, № 6. С. 95–100.
30. **Buck U., Meyer H.** Electron bombardment fragmentation of Ar van der Waals clusters by scattering analysis // *J. Chem. Phys.* 1986. Vol. 84, No. 9. P. 4854–4861.
31. **Bonhommeau D., Halberstadt N., Viel A.** Fragmentation dynamics of argon clusters (Ar_n , $n = 2$ to 11) following electron-impact ionization: modeling and comparison with experiment // *J. Chem. Phys.* 2006. Vol. 124, No. 18. P. 184314-1–184314-9.
32. **Bonhommeau D., Halberstadt N., Buck U.** Fragmentation of rare-gas clusters ionized by electron impact: new theoretical developments and comparison with experiments // *Internat. Rev. Phys. Chem.* 2007. Vol. 26, No. 2, P. 353–390.
33. **Yamada I.** Materials processing by cluster ion beams. History, technology, and applications. Boca Raton–London–New York: CRC Press. Taylor and Francis Group. 2016. Intern. Standard Book Number-13:978-1-4987-1176-0 (eBook – PDF). 239 p.
34. **Schutte S., Buck U.** Strong fragmentation of large rare gas clusters by high energy electron impact // *Intern. J. Mass Spectrom.* 2002. Vol. 220. P. 183–192.

*Статья поступила в редакцию 8 ноября 2016 г.,
после доработки — 16 января 2016 г.*