

УДК 536.423.4 : 539.198

ОБРАЗОВАНИЕ ЗАРЯЖЕННЫХ ЧАСТИЦ ПРИ СТОЛКНОВЕНИИ КЛАСТЕРОВ ВОДЫ С ПОВЕРХНОСТЬЮ

А. А. Востриков, Д. Ю. Дубов, М. Р. Предтеченский

Исследовано новое явление — образование кластерных ионов разного знака при рассеянии нейтральных кластеров воды твердыми поверхностями и появления тока на мишень. Эксперименты проведены методом газодинамического молекулярного пучка. Показано, что образование и разделение зарядов наблюдается при размере кластеров $N=330 \pm 70$ молекул и усиливается с увеличением N . Обнаружен лепестковый характер зависимости тока ионов от угла падения кластеров на мишень. Максимальный ток рассеянных кластерных ионов наблюдался при угле падения относительно нормали к поверхности, равном $70 \pm 5^\circ$, а максимальная вероятность образования и разделения пары единичных зарядов на кластер в пучке оказалась при $N=1200$ равной 10^{-4} . Исследования проведены на мишенях из золота, стали, дюралюминия, германия, стеклотекстолита.

Образование ионных пар в кластерах объясняется реакцией автопротолиза молекул H_2O , возбуждаемых при ударе кластеров о поверхность, а разделение зарядов — несимметричной нейтрализацией ионов в кластерах и отскоком кластеров от поверхности.

Введение

Несмотря на непрерывно возрастающий интерес к свойствам кластеров, вопросы взаимодействия кластеров с поверхностью пока мало исследованы [1-5]. Однако уже в этих исследованиях показано, что поверхность может быть весьма ценным «инструментом» в изучении стабильности, структуры и термодинамических свойств нейтральных и заряженных кластеров.

В настоящей работе представлены результаты молекулярно-пучковых исследований обнаруженного нами в [6, 7] явления образования и разделения зарядов при рассеянии твердой поверхностью нейтральных кластеров воды. Данное явление, как нам кажется, имеет прямое отношение к интенсивно исследуемым в настоящее время процессам автопротолиза воды и взаимодействия сольватированных ионов с твердой поверхностью, а также к процессам образования атмосферного электричества и электризации летательных аппаратов.

Техника и методика эксперимента

Схема формирования кластеризованного молекулярного пучка воды описана ранее [7]. В экспериментах данной работы температура пара в источнике поддерживалась постоянной ($T_0=450$ К), пар расширялся из перегретого состояния, перегрев был не менее 25 К. Средний размер кластеров в пучке (среднее число молекул в кластере) \bar{N} задавался давлением пара в источнике P_0 и измерялся методом задерживающего потенциала [8-9]. Использовалось звуковое сопло с диаметром отверстия $d_* = 1$ мм. Скорость частиц в пучке при расширении с конденсацией ($P_0 d_* \geq 3 \cdot 10^4$ Па·мм), как следует из результатов расчета [10] и эксперимента [11], близка к предельной скорости газодинамического расширения v , а для наших условий равна $1.3 \cdot 10^3$ м/с. Следовательно, кинетическая энергия кластеров воды составляла $\epsilon(N) = 0.17N$ эВ. Давление в камере, где помещались мишени, поддерживалось на уровне $2 \cdot 10^{-4}$ Па.

Эффект электризации поверхности первоначально был обнаружен при нормальном падении кластерированного пучка на плоскую мишень из нержавеющей стали. При этом наблюдался ток на мишень, который зависел от среднего размера кластеров и потенциала, приложенного между мишенью и сеткой перед ней [7]. Для детального исследования эффекта схема эксперимента была изменена — измерялся ток рассеянных ионов (рис. 1). Коллимированный пучок 1 падал на плоскую мишень 2. Мишень могла вращаться, так что угол падения пучка α , отсчитываемый от нормали, менялся от 0 до 80° . В качестве мишеней использовались полированные металлы (золото, сталь, дюралюминий), монокристаллы германия (грани [100] и [110]), стеклотекстолит. Все мишени нагревались до температуры 420—450 К. Отраженные от мишени заряженные фрагменты собирались коллектором 3, который экранировался двумя коаксиальными экранами 4 (внутренним экраном служила сетка с прозрачностью 90%). Коллектор и экраны были выполнены из нержавеющей

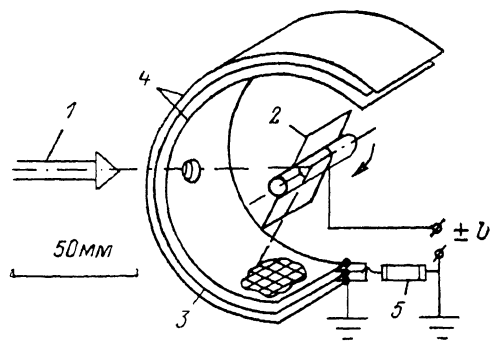


Рис. 1. Схема измерения ионных токов.

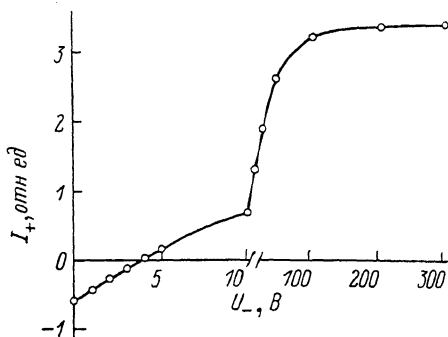


Рис. 2. Ток на коллектор I в зависимости от разности потенциалов мишени и коллектора. $N=900$, стальная мишень, $\alpha=70^\circ$.

стали. Между коллектором и мишенью прикладывалось напряжение $|U| \leq \leq 300$ В. Сигнал с коллектора поступал на вход электрометрического усилителя У-5—6 5 и далее в схему синхронного детектирования (падающий пучок модулировался с частотой 20 Гц) [12]. В качестве детектора ионов использовался также вторичный электронный умножитель жалюзийного типа ВЭУ-1А. В этом случае пучок нейтральных кластеров воды направлялся на первый диод ($\alpha = 45^\circ$), сам умножитель работал в обычном режиме.

Результаты

Прежде всего было проверено отсутствие ионов в падающем пучке. Для этого перед детектором помещалась диафрагма, на которую подавался потенциал относительно источника пара ± 1 кВ. Изменения уровня сигнала при этом не было. На рис. 2 показан ток с коллектора I в зависимости от разности потенциалов между коллектором и мишенью U . Отметим, что при $U=0$ регистрируется ненулевой сигнал I_0 . Такой сигнал наблюдался на всех исследованных поверхностях, причем знак его на разных мишенях был разным. Таким образом, токи отрицательных и положительных зарядов в рассеянном пучке при $U=0$ оказываются нескомпенсированными. Прикладывая к мишени ненулевой потенциал U , мы, с одной стороны, обеспечиваем более полный сбор на коллектор заряженных частиц одного знака, с другой — тормозим рассеянные частицы противоположного заряда. В итоге ток, достигаемый при насыщении, соответствует полному току зарядов одного знака. Отметим, что поле такой ве-

личины ($\sim 10-100$ В/см) недостаточно для десорбции иона с поверхности, так что речь идет именно о рассеянных заряженных частицах. На рис. 2 видно, что насыщение достигалось при $|U| \sim 100$ В, т. е. кинетическая энергия таких частиц не превышает 100 эВ. (Прямые измерения энергии рассеянных частиц обсуждаются ниже).

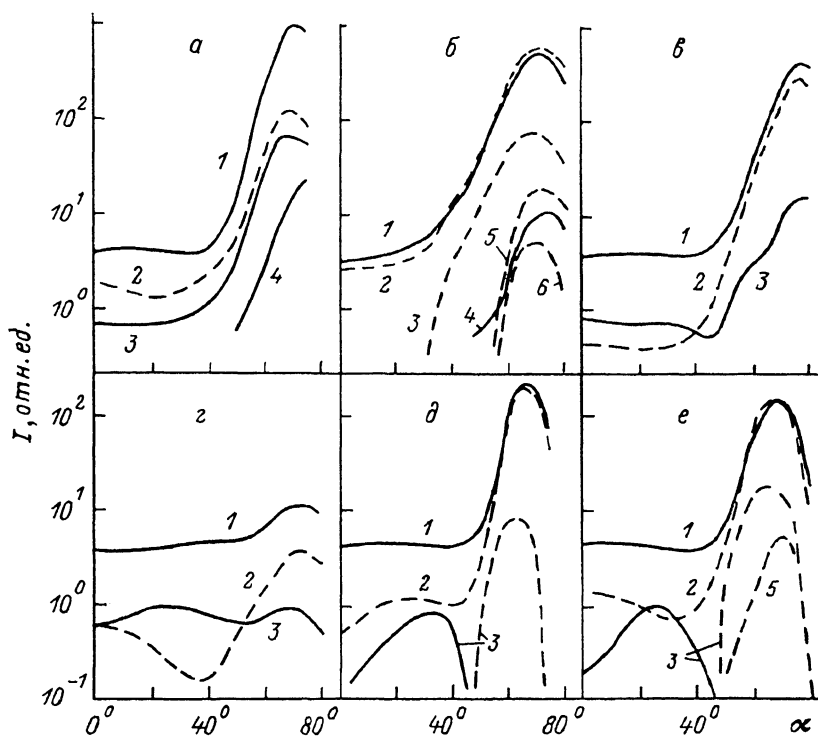


Рис. 3. Токи на коллектор в зависимости от угла падения пучка на мишень из дюралюминия (а), стали (б), золота (в), стеклотекстолита (з), германия [110] (д), германия [100] (е).

U : 1, 4 — +300; 2, 5 — -300; 3, 6 — 0 В. N : 1-3 — 1200, 4 (а) — 277; 4 (б), 5 (в), 6 (в) — 350. (Сплошные линии — положительные, штриховые — отрицательные).

На рис. 3 показаны зависимости I от угла падения α , снятые для разных мишеней и разных размеров кластеров \bar{N} . Для всех кривых характерны резкие максимумы при касательном ($\alpha_{\max} \approx 70^\circ$) падении кластеров. По-видимому, это связано с особенностями рассеяния нейтральных кластеров — большой вероятностью отражения от поверхности кластера или фрагмента, имеющего большую тангенциальную составляющую скорости [2, 3]. Сглаживание максимумов на мишени из стеклотекстолита происходит, по всей вероятности, из-за сильной шероховатости (пористости) поверхности этой мишени. Интересно то, что знак тока I_0 (при $U=0$) на поверхностях германия зависит от угла падения кластеризованного пучка на мишень (рис. 3, д, е, кривые 3). Отметим также, что вид материала поверхности существенно влияет как на абсолютную величину тока, так и на соотношение величин токов разного знака.

Измерения токов при разных размерах кластеров показали, что в исследованном диапазоне средних размеров (100—1300 молекул/кластер) величины сигналов с ростом \bar{N} резко растут. На рис. 4 представлены зависимости токов с коллектора и ВЭУ от \bar{N} . Все кривые на рис. 4 пронормированы на поток кластеров в пучке J_k ($J_k \approx J/\bar{N}$, где J — интенсивность молекулярного пучка, измеренная датчиком интенсивности [12]), то есть представляют собой вероятности P стока на коллектор единичного заряда при падении на мишень кластера

размером $N \approx \bar{N}$. Абсолютная величина P определялась из сравнения абсолютных величин регистрируемых токов с токами ионов, образующихся при ионизации кластеров электронным ударом [7]. Заметим, что максимальное значение в условиях данных экспериментов достигало 10^{-4} .

Методом задерживающего потенциала были проведены измерения энергии рассеянных ионов. Для этого между внутренним экраном коллектора и мишенью помещалась еще одна сетка (на рис. 1 не показана), на которую относительно мишени подавался потенциал, отсекающий заряды одного знака (± 300 В). Энергия проходящих ионов измерялась варьированием потенциала между коллектором и мишенью U . Оказалось, что ток проходящих ионов уменьшается в 2 раза при напряжении задержки $U_{1/2}$ от 14 (при $\bar{N}=1000$) до 25 В (при $\bar{N} \approx 2700$). Измерения были проведены при касательном падении пучка. От знака ионов, вида и температуры мишени величина $U_{1/2}$ зависела слабо. Измерения скорости нейтральных кластеров в рассеянном потоке v_p [2, 3] показали, что она в 2—6 раз меньше скорости кластеров в падающем пучке v и растет с увеличением \bar{N} и α . Так, при $\bar{N} \sim 10^3$ и $\alpha=70^\circ$ для кластеров воды $v_p \approx 0.5v$ [3]. Таким образом, наши данные по напряжению задержки ионов свидетельствуют о том, что размер носителей заряда лежит в пределах 300—600 молекул, т. е. это довольно крупные кластерные ионы.

Характерные особенности рассеяния различными мишенями собраны в таблице. Здесь $\bar{N}=1200$, $\Delta\alpha$ — ширина пика на полувысоте, I_+ , I_- — относитель-

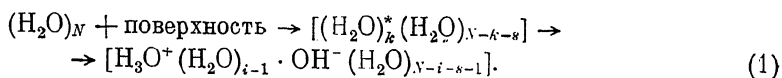
Материал	α_{\max} , град	$\Delta\alpha$, град	I_+ (I_-) при $\alpha = \alpha_{\max}$	I_+ (I_-) при $\alpha = 0$	I_0 (α_{\max})
Золото	77 (75)	16	410 (280)	3.6 (0.9)	+16
Сталь	71 (70)	18 (20)	550 (600)	3.2 (2.6)	-80
Дюралюминий	71 (69)	15 (17)	960 (120)	3.9 (2.2)	+70
Германий [110]	66 (65)	13 (12)	230 (210)	4.2 (0.4)	-10
Германий [100]	69 (67)	13 (14)	170 (170)	4.4 (0.6)	-20
Стеклогекстолит	72 (71)	28	11.6 (3.9)	3.8 (0.4)	+1.2

ные величины токов при полном сборе ионов ($|U|=300$ В). Из таблицы, в частности, видно, что разность токов $I_+ - I_-$ при наличии поля, удерживающего у коллектора ионы одного знака (третья строка снизу), и ток в отсутствие поля (нижняя строка) разные. Это указывает на то, что медленные кластерные ионы при столкновении с поверхностью частично рассеиваются, причем положительно заряженные в большей степени. Очевидно, что скорость нейтрализации медленных кластерных ионов может существенно зависеть от наличия адсорбированного слоя. Поэтому медленные кластерные ионы могут служить эффективным средством диагностики условий на поверхности.

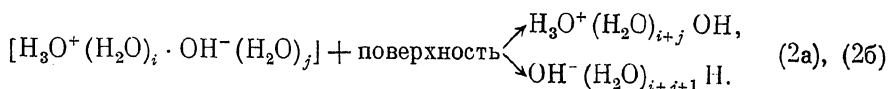
Обсуждение результатов

Таким образом, экспериментально установленным фактом является то, что при рассеянии нейтральных кластеров воды различными поверхностями в пространство рассеиваются кластерные ионы обоих знаков и появляется ток на мишень. В таких же экспериментах с кластерами $(\text{CO}_2)_N$ и $(\text{N}_2\text{O})_N$ явление ионизации кластеров не наблюдалось. По-видимому, при рассеянии кластеров воды появление в рассеянном пучке кластерных ионов связано с образованием ионных пар в кластере и их разделением за время столкновения с поверхностью. Образование ионных пар происходит за счет кинетической энергии столкновения $E = \frac{1}{2} m v^2 \cos^2 \alpha$ в реакции ионной диссоциации (автопротолиза) возбужденных

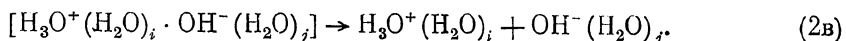
молекул H_2O (аналогичной реакции, характерной для конденсированной воды [13])



Здесь s — количество молекул, испарившихся при столкновении кластера с поверхностью. Разделение зарядов может происходить в двух процессах. Первый и, как нам кажется, основной — это несимметричная нейтрализация ионов в кластере за время взаимодействия с поверхностью



На это указывают крупные размеры рассеянных кластерных ионов при касательном падении. Второй механизм может быть связан с разрушением кластера, фрагменты которого содержат ионы разного знака (при нормальном падении кластеров), и разной скоростью нейтрализации ионов разного знака



В первом случае (несимметричная нейтрализация без разрушения) для полного тока рассеянных кластерных ионов I можно написать $I = I_+ - I_-$, где

$$I_+ = J_k P_i \gamma_- (1 - \gamma_+), \quad I_- = J_k P_i \gamma_+ (1 - \gamma_-). \quad (3a), (3b)$$

Здесь P_i — вероятность образования ионной пары; γ_+ , γ_- — вероятность нейтрализации положительных и отрицательных ионов за время столкновения кластера с поверхностью. Таким образом, экспериментально измеряемые величины I_+ , I_- (α) (рис. 3) и $P(\bar{N})$ (рис. 4) являются результирующими двух процессов: образования ионных пар в кластере и разделения зарядов.

В общем случае образование ионных пар возможно не только при ударе кластера о поверхность (неравновесный механизм), но и при движении кластера в струе и пучке ($\sim 10^{-3}$ с) (установление равновесной концентрации). Равновесная концентрация ионных пар в конденсированной воде

$$q(T) = A \exp(-E_a/2kT), \quad (4)$$

где A — константа, E_a — энергия активации реакции автопротолиза, k — постоянная Больцмана. (Так, в жидкой воде $A = 1.4 \cdot 10^{-4}$, $E_a = 0.58$ эВ [13]). Согласно [14], температура кластеров размером $\bar{N} = 300 - 1000$ в пучке $T_k \simeq \simeq 180$ К, что дает равновесное значение $q \simeq 10^{-12}$ для жидкой воды и $\simeq 10^{-16}$ для льда. В кластерах E_a больше, чем в конденсированной фазе, так что $q \leq \leq 10^{-12}$, в то время как в данных экспериментах предельное значение $q \simeq \simeq P(\bar{N})/\bar{N} \simeq 10^{-7}$ (рис. 4). Следовательно, образованием ионных пар до столкновения кластера с поверхностью можно пренебречь.

Как видно из (4), вероятность образования пар P_i должна сильно зависеть от энергии активации реакции (1). Очевидно, что для кластеров в зависимости от их размера величина E_a изменяется от $\simeq 17$ (пороговой энергии полярной диссоциативной ионизации молекул H_2O в газовой фазе) до 0.58 эВ (в воде). Столь значительное снижение пороговой энергии образования ионных пар объясняется сильной гидратацией ионов H^+ и OH^- окружающими молекулами.

На рис. 5 представлена зависимость E_a от N для случая, когда заряды разделяются (реакции (1) — (2в)). Энергии связи нейтральных кластеров и кластеризованных ионов воды взяты из работ [15, 16] соответственно; величины i, j выбраны из условий $i + j = N$, $E_a(N) = \min E_a(N, i)$; $s = 0$. Обращает на себя внимание то, что уже при $N = 12$ энергия такой «ионизации разрушением» (5, 15 эВ) близка к энергии обычной диссоциации молекулы воды на нейтральные радикалы H и OH (5, 11 эВ), т. е. уже небольшое число гидратирующих молекул эффективно «уравновешивает» кулоновские силы между зарядами. Для $N > 12$ кривая $E_a(N)$ проэктраполирована, при этом ромбиком отмечено

ее пересечение с прямой $\varepsilon(N)$, т. е. пороговое значение размера, начиная с которого образование ионов при ударе кластера о поверхность становится энергетически возможным. В эксперименте действительно наблюдается сильная зависимость сигнала от \bar{N} (рис. 4), что свидетельствует о пороговом характере процесса. Для определения порогового размера N_* по зависимостям $P(\bar{N})$

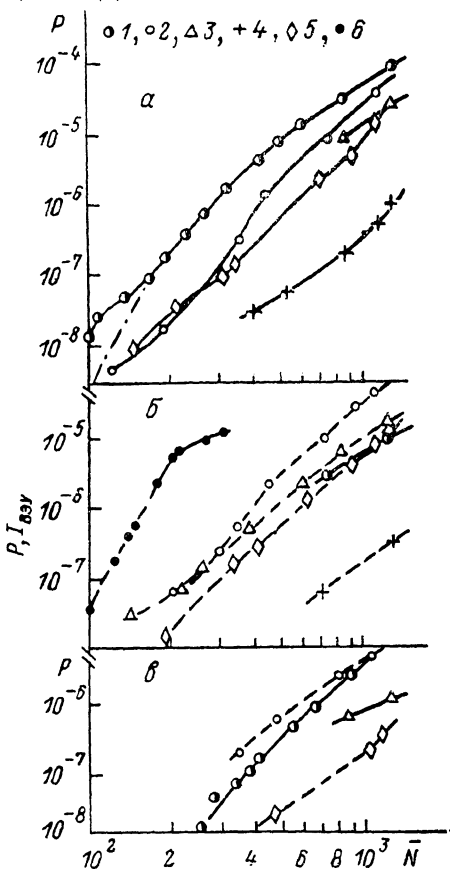


Рис. 4. Токи на коллектор и сигнал с ВЭУ, нормированные на поток кластеров в пучке, в зависимости от среднего размера кластеров.

$U=+300$ (а), -300 (б), 0 В (в). Мишени из дюралюминия (1), стали (2), золота (3), стеклотекстолита (4), германия 100 (5). Сигнал с ВЭУ (в). Сплошные линии — положительные, штриховые — отрицательные токи, штрихпунктирная — расчет по (5).

Рис. 5. Минимальная энергия развала кластера $(H_2O)_N$ на пару гидратированных ионов в зависимости от N .

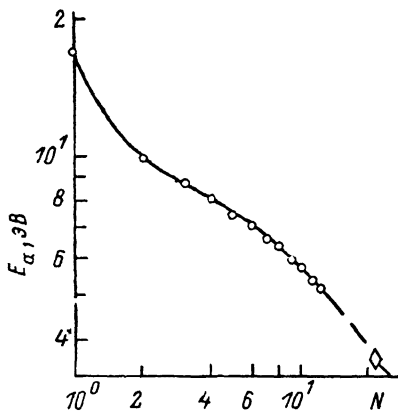
необходимо учесть, что функция распределения кластеров по размерам в падающем пучке $f(N)$ имеет значительную ширину [9, 10]. Тогда наблюдаемая величина $P(\bar{N}) = \int_0^{\infty} P_n(N) f(N) dN$,

где $P_n(N)$ — истинная вероятность выделения иона на коллекторе при рассеянии кластера размером N молекул. Взяв для $f(N)$ зависимость

$$f(N) = 4N/\bar{N}^2 \exp(-2N/\bar{N}) [?],$$

а для $P_n(N)$ в виде

$$P_n(N) = P_0(N/N_* - 1)^\beta,$$



получим

$$P(\bar{N}) = P_0 \Gamma(\beta + 1) \left(\frac{\bar{N}}{2N_*}\right)^{\beta-1} \left[(\beta + 1) \frac{\bar{N}}{2N_*} + 1 \right] \exp\left(-\frac{2N_*}{\bar{N}}\right). \quad (5)$$

Из сравнения рассчитанных по (5) зависимостей $P(\bar{N})$ с экспериментальными получено $\beta=2-3$, $N_* = 330 \pm 70$. На рис. 4, а штрихпунктиром показана расчетная зависимость $P(\bar{N})$ для $N_* = 350$, $\beta=2$, аппроксимирующая экспериментальную кривую $P(\bar{N})$ для поверхности дюралюминия.

Размер $N \approx 300$, по-видимому, минимальный размер, при котором энергия E_a практически достигает своего минимального значения. Действительно, при увеличении числа молекул в гидратной оболочке усиление гидратации иона происходит лишь до тех пор, пока радиус оболочки не достигает онзагеровского радиуса экранировки [17] $r = e^2/DkT$, где e — заряд иона, D — константа диэлектрической проницаемости. Для $T \approx 180$ К $D \geq 140$ [13], так

что $r \leq 6 \text{ \AA}$, тогда как радиус кластера размером 300 молекул, оцененный по плотности жидкой фазы, равен 13 \AA . Таким образом, при образовании ионной пары в кластере такого размера он представляет собой систему из двух заполненных гидратных оболочек, окружающих ионы. Заметим, что минимальное значение энергии E_a оказывается близким к энергии возбуждения колебательных мод ν_1 (0.45), ν_2 (0.2) и ν_3 (0.47 эВ) молекулы H_2O , а эти значения энергии в свою очередь сравнимы с энергией сублимации (предельной энергией межмолекулярных колебаний) молекул H_2O из твердого состояния воды (≈ 0.45 эВ). Это, с одной стороны, увеличивает число каналов диссипации энергии столкновения кластеров с поверхностью, но, с другой стороны, способствует переходу энергии с межмолекулярных колебаний на внутримолекулярные, ответственные за протекание реакции (1). Неравновесное колебательное возбуждение молекул H_2O в кластерах при ударе о поверхность может существенно увеличить вероятность образования ионных пар. Так, в работе [18] реакция автопротолиза стимулировалась колебательным возбуждением молекул H_2O в жидкой воде лазерным излучением (полоса 1.06 мкм). В случае рассеяния кластеров можно уверенно говорить о неравновесном характере реакции (1). При равновесном нагреве кластеров в результате торможения на мишени наблюдалось бы испарение их, что противоречит наблюдениям [2, 3] и результатам измерения методом задерживающего потенциала размеров кластерных ионов настоящей работы. Более того, значения вероятности $P(\bar{N})$ (рис. 4) оказываются значительно больше, чем это следует из формулы (5), если в ней положить $kT = \varepsilon(N) \cos^2 \alpha / C$. Здесь C — теплоемкость кластера [10].

Теперь рассмотрим механизм разделения ионных пар в результате несимметричной нейтрализации ионов в кластере. Для этого введем характерные времена нейтрализации ионов на поверхности τ_+ , τ_- и запишем уравнение для вероятности сохранения заряда в кластере $P_{+,-}^k$ в виде

$$\frac{dP_{+,-}^k}{dt} = -\frac{P_{+,-}^k}{\tau_{+,-}}, \quad P_{+,-}^k(t=0) = 1, \quad (6a)$$

если ионы образуются в первый момент столкновения, и

$$\frac{dP_{+,-}^k}{dt} = \frac{1}{t_{ct}} - \frac{P_{+,-}^k}{\tau_{+,-}}, \quad P_{+,-}^k(t=0) = 0, \quad (6b)$$

если ионы образуются равновероятно в течение всего времени столкновения (времени взаимодействия кластера с поверхностью) t_{ct} . Поскольку время столкновения t_{ct} может изменяться от «бесконечности» (захват кластера) до 10^{-13} с (период межмолекулярных колебаний), то, по-видимому, $t_{ct}/\tau_{+,-} \gg 1$, и в первом случае имела бы место полная нейтрализация. Во втором случае

$$P_{+,-}^k = \tau_{+,-} [1 - \exp(-t/\tau_{+,-})]/t_{ct}, \quad \gamma_{+,-} = 1 - P_{+,-}^k(t=t_{ct})$$

и при $t_{ct} \gg \tau_{+,-}$

$$\gamma_{+,-}(1 - \gamma_{-,+}) \approx \tau_{-,+}/t_{ct}.$$

Таким образом, второй случай является более вероятным, и токи $I_{+,-}$ с учетом (3) равны

$$I_{+,-} = J_k P_i \tau_{+,-} / t_{ct}. \quad (7)$$

Из (7) следует, что отличие величин токов I_+ и I_- (рис. 3, 4) связано с разным временем нейтрализации ионов разного знака, т. е. $\tau_+ \neq \tau_-$, а величина отношения τ_+/τ_- зависит от материала мишени и угла падения кластеров на мишень. Далее, на рис. 4 видно, что $I_+(\bar{N})/I_-(\bar{N}) \approx \text{const}$. Следовательно, времена τ_+ и τ_- либо одинаково зависят, либо вовсе не зависят от \bar{N} . В целом же из формулы (7) следует, что поведение зависимостей $I_{+,-}(\bar{N}, \alpha)$ определяется зависимостями $P_i(N, \alpha)$, $t_{ct}(N, \alpha)$ и отношением $t_{ct}/\tau_{+,-}$.

Наблюдаемое на рис. 4 увеличение $P(\bar{N})$ с ростом \bar{N} можно объяснить как увеличением P_i из-за увеличения энергии столкновения кластеров с по-

верхностью, так и увеличением вероятности вылета нескомпенсированных кластерных ионов из-за уменьшения времени t_{cr} . Вывод о том, что с увеличением \bar{N} уменьшается время взаимодействия кластеров с поверхностью, можно сделать из результатов [2], где наблюдалось увеличение скорости рассеянных кластеров v_p с ростом \bar{N} в падающем пучке. Отметим также, что динамика рассеяния кластеров, по-видимому, во многом определяется упругими свойствами кластеров, связанными с его внутренней структурой. Так, в [2] кластеры фреона-12 не отскакивали от поверхности, а кластеры CO_2 отскакивали. При этом болометрические измерения энергии связи молекул в кластерах показали, что кластеры CF_2Cl_2 были жидкими, а кластеры CO_2 размером уже в несколько десятков молекул — твердыми. Однако отскок кластеров CO_2 наблюдался при размере $\bar{N} \geq 300$, когда, как это следует из измерений методом дифракции электронов [19], кластеры приобретали упорядоченную кристаллическую структуру. Такой же вывод следует из данных по рассеянию кластеров H_2O [3] и результатов дифракционных исследований [14].

Что касается угловой зависимости токов I_+ , I_- (рис. 3), то появление максимума может быть следствием конкуренции двух факторов. С одной стороны, с увеличением α уменьшается кинетическая энергия столкновения, а следовательно, величина P_i . С другой стороны, с увеличением α уменьшается время столкновения, так как экспериментально наблюдается увеличение скорости v_p с увеличением α , а также увеличение доли кластеров, рассеянных в лепестковом компоненту [3]. Более того, сама зависимость $t_{cr}(\alpha)$ может иметь минимум, так как нормальная составляющая скорости $v_p \cos \alpha$, как следует из данных [3], имеет максимум при $\alpha = 65 \pm 5^\circ$.

Сделаем также несколько замечаний о влиянии материала мишени на наблюдаемые процессы. Прежде всего заметим, что интенсивность молекулярного пучка в настоящей работе такова, что за время ~ 1 с на поверхность поступает количество молекул, соответствующее полному заполнению монослоя. Продолжительность эксперимента составляет несколько часов. Поэтому можно утверждать, что кластеры взаимодействовали с поверхностями, окисленными в атмосфере и как бы «обработанными» парами воды в условиях вакуума. На различных мишенях, по-видимому, формируется различный по химическим и физическим свойствам адсорбированный слой. Очевидно, что в зависимости от условий на поверхности может снижаться пороговое значение энергии образования ионных пар в кластерах и изменяться время нейтрализации ионов и время движения кластеров в поле притягивающего потенциала поверхности. В частности, на наличие зависимости времени столкновения от материала мишени указывают данные работы [3], где динамика рассеяния кластеров воды исследована на разных поверхностях: Pt, Al, CuS, Si, стекле и льду. Хотя по постановке эксперимента авторы не могли зарегистрировать образования заряженных частиц, тем не менее индикатрисы рассеяния нейтральных кластеров на разных мишенях отличались. Следовательно, наблюдаемое (рис. 3, 4) различие величин I_+ , I_- и $P(\bar{N})$ для разных мишеней в одинаковых условиях эксперимента (см. также таблицу) может быть связано с разными условиями на поверхности, зависящими от материала мишени.

Заключение

Явление образования и разделения зарядов при столкновении с поверхностью нейтральных кластеров воды, по-видимому, можно наблюдать и для кластеров других дипольных водородосодержащих молекул как однородных, например $(NH_3)_n$, так и гетерогенных. Рассмотренный в настоящей работе механизм образования ионных пар может иметь место и для макрочастиц, в то время как процессами зарядки макрочастиц, предложенными в [20], нельзя объяснить образование ионов с участием столь малых частиц, какими являются кластеры.

В последующем предполагается провести исследование явления электризации, используя дополнительное стимулирование процесса образования

ионных пар в кластерах путем селективного колебательного возбуждения молекул H_2O в кластерах. Поскольку для разделения ионных пар, как следует из предложенной здесь модели процесса, важными являются величины и зависимости характерного времени нейтрализации зарядов в кластерах от размера кластера, угла падения кластеров и материала мишеней, то предполагается их получить, используя методику [5] и данные по взаимодействию электронов с кластерами воды [7, 9].

Литература

- [1] Gspann J., Krieg G. J. Chem. Phys., 1974, v. 61, N 10, p. 4037—4047.
- [2] Востриков А. А., Миронов С. Г., Семьякин Б. Е. ЖТФ, 1982, т. 52, № 6, с. 1164—1169.
- [3] Dreyfuss D., Wacham H. Y. Progress in Astronautics and Aeronautics. N. Y., 1981, v. 74, pt. 1, p. 183—197.
- [4] Beuchler R., Friedman L. Chem. Rev., 1986, v. 86, N 3, p. 521—537.
- [5] Востриков А. А., Предтеченский М. Р. ЖТФ, 1986, т. 56, № 4, с. 747—750.
- [6] Востриков А. А., Дубов Д. Ю., Предтеченский М. Р. ЖТФ, 1986, т. 56, № 7, с. 1393—1395.
- [7] Востриков А. А., Дубов Д. Ю., Предтеченский М. Р. ЖТФ, 1987, т. 57, № 4, с. 760—769.
- [8] Vauchert J., Hagena O. F. Z. Naturforsch. A., 1965, Bd. 20, N 9, S. 1135—1142.
- [9] Востриков А. А., Дубов Д. Ю., Предтеченский М. Р. Препринт Ин-та теплофизики СО АН СССР, № 150-86. Новосибирск, 1986.
- [10] Востриков А. А., Дубов Д. Ю. Препринт Ин-та теплофизики СО АН СССР, № 112-84. Новосибирск, 1984.
- [11] Dreyfuss D., Wacham H. Y. J. Chem. Phys., 1982, v. 76, N 4, p. 2031—2042.
- [12] Востриков А. А., Куснер Ю. С., Ребров А. К., Семьякин Б. Е. ПТЭ, 1978, № 1, с. 150—152.
- [13] Эйзенберг Д., Кауцман В. Структура и свойства воды. Л.: Гидрометеоиздат, 1975. 280 с.
- [14] Torchet G., Schwartz P., Farges J. et al. J. Chem. Phys., 1983, v. 79, N 12, p. 6196—6202.
- [15] Biffey I. P., Byers Brown W. Chem. Phys. Lett., 1984, v. 109, N 1, p. 59—65.
- [16] Смирнов Б. М. Комплексные ионы. М.: Наука, 1983. 150 с.
- [17] Пикалов А. К. Современная радиационная химия. Основные положения. Экспериментальная техника и методы. М.: Наука, 1985. 375 с.
- [18] Phillips G. R., Eyring E. M. J. Phys. Chem., 1986, v. 90, N 2, p. 316—319.
- [19] Torchet G., Bouchier H., Farges J. et al. J. Chem. Phys., 1984, v. 81, N 4, p. 2137—2143.
- [20] Мучник В. М. Физика грозы. Л.: Гидрометеоиздат, 1973. 352 с.

Институт теплофизики
СО АН СССР
Новосибирск

Поступило в Редакцию
27 июля 1987 г.