

02;03;10;12

©1993

ПРИПОРОГОВАЯ ИОНИЗАЦИЯ КЛАСТЕРОВ АРГОНА ЭЛЕКТРОННЫМ УДАРОМ

А.Н.Завилопуло, А.И.Долгин, М.А.Ходорковский

К настоящему времени накоплен довольно обширный экспериментальный и теоретический материал по свойствам ионных и нейтральных кластеров [1,2], которые существенно зависят от числа составляющих его мономеров. Наиболее распространенным методом экспериментального исследования кластерных пучков является ионизационный, суть которого состоит в преобразовании нейтральных частиц в заряженные тем или иным способом, например электронным, ионным или фотонным ударом. Последующий анализ полученных заряженных частиц фотометрическим [3], масс-спектрометрическим [4] или методом задерживающего потенциала (ЗП) [5] позволяет получать информацию о физических и химических свойствах кластеров.

Одним из предназначений нашего экспериментального комплекса является проведение исследований с молекулярными пучками, включая кластерные. Основу установки составляет газодинамический источник молекулярных пучков (ГИМП) с импульсным соплом и квадрупольным масс-спектрометром в качестве регистрирующего элемента. Не останавливаясь на методических и технологических аспектах, отметим, что в данном экспериментальном комплексе учтены практически все требования для проведения многоплановых экспериментов с молекулярными пучками.

Управление всем комплексом установки осуществляется от мультипроцессорной системы, которая собирает и обрабатывает сигналы, поступающие со всех контрольных датчиков. В случае ошибки или нарушения работы любого из контролируемых устройств происходит его отключение (или блокировка) с адресным звуковым и световым сообщением об ошибке. Система автоматики обладает высокой надежностью и предусматривает непрерывную круглосуточную работу всего комплекса.

Заметим, что при регистрации ионных пучков порядка 10^{-8} А можно успешно применять приемник в виде цилиндра Фарадея, в остальных случаях широко используются ВЭУ, которые отличаются высоким быстродействием и большим коэффициентом усиления. Однако при регистрации кластерных ионов возникают специфические проблемы, связанные, в первую очередь, с учетом коэффициента вторичной эмиссии ВЭУ. Более того, понятно, что если кинетическая энергия, приходящаяся на атом (молекулу) в кластере, окажется меньше пороговой, то такой ион вообще не будет зарегистрирован. С этим механизмом искажения спектра может быть связано расхождение результатов масс-спектрометрических измерений [4,6] и измерений ЗП [5]. Так, функция распределения кластеров по размерам, измеренная методом ЗП, имеет экстре-

мум, тогда как масс-спектрометрические измерения дают в основном функцию, близкую к монотонно убывающей. Поскольку применимость ВЭУ в большинстве работ не рассматривается [2], нами были поставлены специальные эксперименты по определению и учету зависимости интенсивности тока ВЭУ для кластеров разной кратности (n). Измеренная нами функция распределения кластеров аргона по размерам близка к измеренной методом ЗП и имеет максимум при $n = 7$.

Работоспособность экспериментальной установки и адекватность получаемых результатов подтверждалась контрольными опытами, определившими оптимальные режимы работы комплекса в целом. Эти контрольные эксперименты подтвердили правильность выбранной методики и позволили провести систематические исследования эффективных сечений ионизации и порогов ионизации кластеров аргона электронным ударом.

Как известно, спектроскопический порог ионизации атома Аг равен $E_i = 15.76$ эВ, а сечение ионизации имеет резко выраженный пороговый характер, т.е. наблюдается резкий рост сечения сразу за потенциалом ионизации [7]. Что касается порогов ионизации кластеров, то они в большинстве случаев либо неизвестны, либо точность их определения неудовлетворительна. После тщательного измерения сечения ионизации кластеров различной кратности вблизи порога нами применены два независимых метода обработки начального участка кривой: линейной интерполяции (аналогично [8]) и метод второй производной [9]. Процедура обработки по первому методу заключалась в линейной интерполяции начального участка кривой ионизации с учетом уровня фона, точка пересечения этих двух прямых определяла координату на оси энергий, собственно начало процесса ионизации (рис. 1). Подобная процедура применена в работе [8] для определения порогов ионизации кластеров серебра и меди. Второй метод обработки заключается в нахождении второй производной при численном дифференцировании того же начального участка кривой ионизации. Проверка обоих методов проводилась по порогам ионизации Ag^+ и Ag^{++} , оказалось, что оба метода дают результат с точностью 0.12 эВ. Эти же данные позволили определить контактную разность потенциалов и, следовательно, шкалу энергий ионизирующих электронов. Затем аналогичная процедура обработки применена для всех пороговых участков сечений ионизации кластеров аргона.

На рис. 1 приведен начальный участок сечения ионизации Ag_2 , обработанный обоими методами. Как видим, экстремум второй производной (сплошная кривая) и линейная аппроксимация начального участка сходятся практически в одной точке на шкале энергий, которая и соответствует порогу ионизации кластера данной кратности. Определив таким способом пороги ионизации кластеров с $n = 2 - 12$, можно построить зависимость пороговой энергии ионизации от числа атомов в кластере n , которая и показана на рис. 2, а. Пороговая энергия сначала возрастает, затем выходит на максимум и в области больших масс кластеров убывает, приближаясь к пороговому значению ионизации димера $(Ag)_2$. Такое поведение кривой, видимо, объясняется изменением энергии связи, которая является важным физическим параметром в кластере

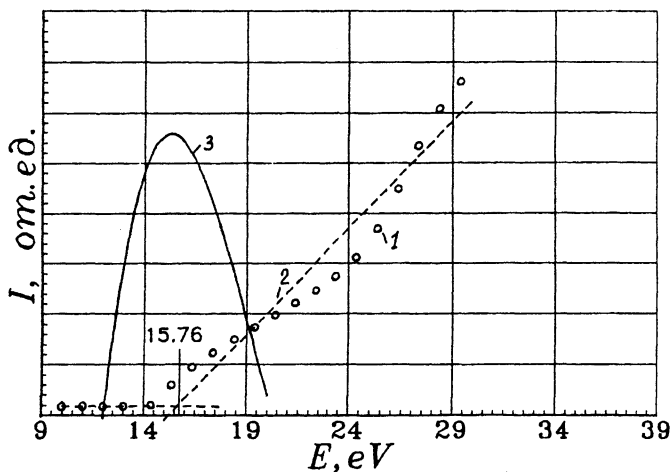


Рис. 1. Пороговый участок эффективного сечения ионизации димера аргона электронным ударом: 1 — эксперимент, 2 — линейная интерполяция, 3 — вторая производная, цифры — спектроскопический порог ионизации атома Ar.

при переходе от малых n к большим. Действительно, представленная на рис. 2 *b* зависимость энергии связи от числа мономеров (атомов) в кластере (построена нами по данным работы [10]) также имеет максимум примерно при той же абсциссе. Сопоставляя полученную нами зависимость порога ионизации кластеров Ar от n (см. рис. 2 *a*), заключаем, что проявление максимума в окрестности $n = 7$ связано с наличием магических чисел для кластеров аргона [11].

Последующий анализ представленной на рис. 2 *a* зависимости позволил аппроксимировать ее следующей формулой:

$$E_n = (E_i + E_{св}) \left[1 - \left(\frac{n-7}{E_i + E_{св}} \right)^2 \right], \quad (1)$$

где E_i — потенциал ионизации Ar, $E_{св}$ — усредненная энергия связи в кластере, n — число атомов в кластере. Расчет по формуле (1) в пределах точности эксперимента совпадает с экспериментальной зависимостью (см. рис. 2, *a*).

Таким образом, можно сделать вывод о том, что определяющим фактором в процессе ионизации кластеров вблизи порога является энергия связи.

В заключение авторы выражают искреннюю благодарность профессору О.Б.Шпенику и А.В.Снегурскому за ряд ценных замечаний. Авторы благодарны Е.Э.Контрошу за полезные дискуссии и помощь при обработке результатов эксперимента.

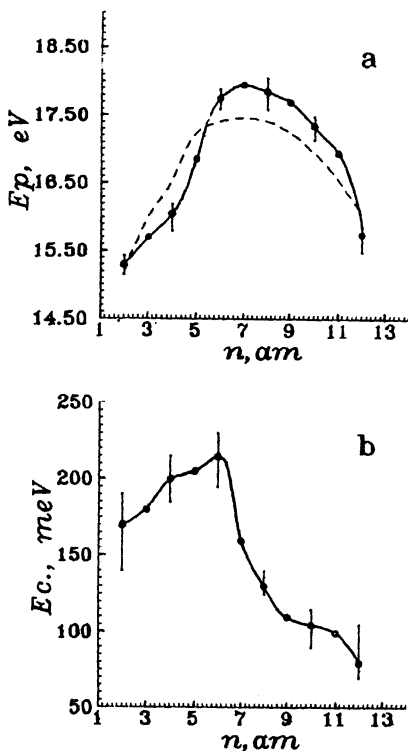


Рис. 2. Зависимость пороговой энергии и энергии связи кластеров аргона от размера (числа мономеров) кластеров; 2a: зависимость от пороговой энергии: точки — эксперимент, пунктир — расчет по формуле (1); 2b: зависимость от энергии связи: точки — данные работы ^[10].

Список литературы

- [1] Александров М.Л., Куснер Ю.С. Газодинамические молекулярные, ионные и кластеризованные пучки. Л.: Наука, 1989. 271 с.
- [2] Scjles G. et.al. Atomic and Molecular Beam Methods Oxford: Oxford University Press. 1989. V. 1.
- [3] Верхолецова Э.Т. и др. // Письма в ЖЭТФ. 1974. Т. 20. Вып. 7. С. 479-481.
- [4] Greene F.T., Milne T.A. // J. Chem. Phys. 1963. V. 39. N 11. P. 3150—3157.
- [5] Bauchert I., Hagena O.F. // Z.Naturf. 1965. V. 20A. P. 9-14.
- [6] Lin Sin Shung // Rev. Sci. Instr. 1973. V. 44. N 4. P. 158-166.
- [7] Tawara H., Kato T., Ohnishi M. // IPPJ-AM-37. 1985.
- [8] Franzreb K., Wucher A., Oechsner H. // Z.Phys.D — Atom, Mol. & Clust. 1990. V. 17. P. 51-62.

- [9] *Lossing F.P.* et al. // J. Chem. Phys. 1971. V. 54. N 12. P. 5431-5437.
[10] *Engelking P.C.* // J. Chem. Phys. 1987. V. 87. P. 936-941.
[11] *Folthz M.* et al. // J. Chem. Phys. 1991. V. 94. P. 810-811.

Институт электронной физики АН Украины,
Ужгород
Институт прикладной химии,
С.-Петербург

Поступило в Редакцию
30 мая 1993 г.
