

ИССЛЕДОВАНИЕ ВОЗМОЖНОСТИ СЕЛЕКЦИИ МОЛЕКУЛ, ВНЕДРЕННЫХ В НАНОКАПЕЛЬКИ (КЛАСТЕРЫ) СВЕРХТЕКУЧЕГО ГЕЛИЯ

*В. Н. Лохман, Г. Н. Макаров**

*Институт спектроскопии Российской академии наук
142190, Троицк, Московская обл., Россия*

Поступила в редакцию 22 сентября 2004 г.

Изучена возможность селекции молекул, внедренных в нанокapельки (кластеры) сверхтекучего гелия. Предлагаемый метод основан на селективном колебательном возбуждении молекул, внедренных в кластеры, интенсивным лазерным ИК-излучением, что приводит к значительному уменьшению размеров возбуждаемых кластеров, и последующем разделении кластеров по размерам за счет рассеяния кластерного пучка на пересекающем его молекулярном (атомном) пучке. Подробно описан метод и проведен анализ возможности селекции молекул (на примере SF_6), внедренных в кластеры гелия, путем их возбуждения интенсивным излучением CO_2 -лазера и разложения кластерного пучка по углу на пучке атомов ксенона. Результаты анализа показывают, что с помощью предложенного метода можно проводить селекцию молекул по изотопному (компонентному) составу. Рассмотрены преимущества и недостатки метода.

PACS: 33.80.-b, 42.62.Fi, 36.40.-c, 28.60.+s

1. ВВЕДЕНИЕ

В настоящее время большое число экспериментальных и теоретических исследований проводится со сверхтекучими каплями (кластерами) гелия нанометрового размера, которые получают при истечении газа из охлаждаемых сопловых источников (см., например, обзорные статьи [1–11]). Размер кластеров, который определяется числом N атомов гелия в капле, составляет от нескольких десятков до $N \approx 10^7$. Разработанные методы получения пучков сверхтекучих нанокapелек гелия и внедрения в эти капельки одиночных молекул позволяют изучать спектры молекул и кластеров в мягкой квантовой матрице нового типа — в жидком сверхтекучем гелии [1–9]. Указанные методы позволяют не только исследовать спектры одиночных молекул и кластеров при очень низкой температуре ($T \approx 0.37$ K), но и на основе спектроскопических измерений изучать свойства самих сверхтекучих капелек гелия [5, 6, 9]. Кроме того, эксперименты с каплями гелия открывают большие возможности для исследования многих физико-химических

процессов, происходящих на атомно-молекулярном уровне при предельно низких температурах. Так, например, метод внедрения молекул в нанокapельки гелия позволяет получать длинные цепочки определенным образом ориентированных полярных молекул внутри капелек сверхтекучего гелия [12], что представляет особый интерес в случае биологически важных молекул. Уникальные условия, которые реализуются для роста кластеров внутри капелек сверхтекучего гелия, позволяют получать высокоэнергетические изомеры, такие, как, например, циклические гексомеры воды — самые мельчайшие кусочки льда [13]. Наблюдались также химические реакции, протекающие внутри капелек гелия при очень низкой температуре [14], и ориентационные эффекты, имеющие место при взаимодействии капелек гелия с молекулами [15]. Недавно нами была предложена и проанализирована [16] возможность селекции молекул, внедренных в нанокapельки гелия, по изотопному (компонентному) составу. В данной работе представлены результаты более широкого и глубокого исследования возможности применения пучков сверхтекучих нанокapелек/кластеров гелия для селекции молекул, внедренных в капель-

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

ки, по изотопному (компонентному) составу. Дано подробное описание предлагаемого метода и на примере молекул SF_6 , внедренных в нанок капельки гелия, проведен детальный анализ его возможностей для разделения изотопов внутри нанок капельек сверхтекучего гелия.

2. ОСНОВЫ МЕТОДА

В результате экспериментальных [1, 2, 17, 18] и теоретических [19–22] исследований установлено, что нанок капельки (кластеры) гелия-4 с числом частиц $N \geq 100$ являются сверхтекучими [23]. Молекулы, внедренные в них, свободно вращаются внутри капельки и имеют очень узкие спектры ИК-поглощения благодаря довольно низкой температуре капельки ($T \approx 0.37$ К [1–3, 6–9]). Так, например, полная ширина полосы поглощения колебания ν_3 молекул $^{32}SF_6$ в капельке сверхтекучего гелия составляет всего около 0.25 cm^{-1} [24–26]. Следовательно, при этом практически полностью «разделяются» спектры ИК-поглощения не только в случае молекул, имеющих сравнительно большие (≤ 5 – 10 cm^{-1}) изотопные сдвиги, как, например, SF_6 , SiF_4 , но также и в случае молекул, содержащих тяжелые элементы, изотопные сдвиги в спектрах ИК-поглощения которых меньше или равны 1 cm^{-1} (OsO_4 , WF_6 , UF_6 и др.). Таким образом, резкое сужение спектров линейного поглощения молекул, внедренных в нанок капельки сверхтекучего гелия, дает возможность высокоселективно возбуждать лазерным ИК-излучением молекулы внутри капелек. По существу это позволяет возбуждать только те кластеры гелия в пучке, внутри которых находятся молекулы выбранного изотопного состава.

Поглощение молекулой, внедренной в нанок капельку гелия, излучения приводит к нагреву капельки и испарению из нее определенного числа атомов [1–9, 26]. Например, после поглощения одного кванта излучения CO_2 -лазера ($\lambda \approx 10$ мкм, $\hbar\omega \approx 0.12$ эВ) из капельки гелия испаряется около 200 атомов [1, 5, 9, 26]. За счет испарения атомов капелька охлаждается, и ее температура снова стабилизируется при $T \approx 0.37$ К [1, 7, 9, 27]. Причем нагрев и испарение атомов происходят довольно быстро после поглощения фотона (за времена $t \leq 10^{-8}$ – 10^{-9} с [26–29]). Указанные выше факторы могут быть положены в основу метода селекции молекул внутри нанок капельек сверхтекучего гелия по изотопному, а также компонентному составу.

Суть метода состоит в следующем (рис. 1). Пучок нанок капельек (кластеров) сверхтекучего гелия с внедренными в них молекулами на некотором рас-

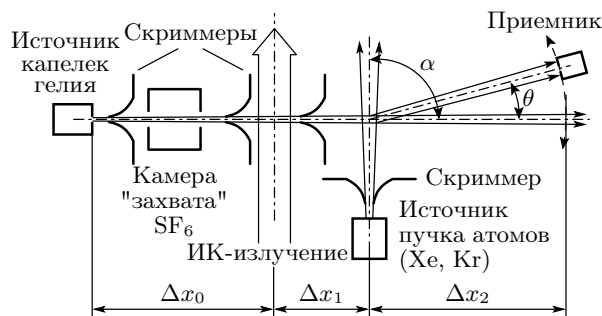


Рис. 1. Схема эксперимента

стоянии Δx_0 от сопла облучается интенсивным лазерным ИК-излучением, резонансным с колебаниями молекул выбранного изотопного состава. При этом возбуждаются только те кластеры гелия в пучке, внутри которых находятся резонансно возбуждаемые молекулы, в то время как остальные кластеры, внутри которых находятся молекулы, не поглощающие излучение лазера, не возбуждаются. Поглощенная энергия приводит к нагреву капельки и испарению из нее атомов гелия. Испаряющиеся атомы изотропно отлетают от кластера. Энергия связи на атом (в кельвинах) в кластере гелия как функция N определяется [19, 30] соотношением

$$E/N = -7.21 + 17.71N^{-1/3} - 5.95N^{-2/3}. \quad (1)$$

В больших кластерах ($N \geq 10^6$ – 10^7 атомов) энергия связи атомов примерно равна энергии связи в объемном жидком гелии (около 7.2 К [19]), и она уменьшается по мере уменьшения размера кластера. Так, в кластерах размерами $N \leq 10^3$ атомов энергия связи составляет $E/N \leq 5.5$ К, а в кластерах размерами $N \leq 200$ атомов — $E/N \leq 4$ К [19]. В допированных кластерах энергия связи атомов больше, чем в беспримесных кластерах [19]. Взаимодействие между частицей примеси и атомами гелия сильнее, чем между атомами гелия в кластере. Поэтому разница в энергиях связи сильно зависит от типа частицы примеси, она особенно велика в кластерах малого размера ($N \leq 100$) [19]. Например, в кластере гелия размером $N \approx 100$ с внедренной в него молекулой SF_6 энергия связи атомов составляет $E/N \approx 10$ К [19] и возрастает до величины $E/N \approx 20$ К в кластерах с $N \approx 40$.

В условиях, когда возбуждаемый кластер поглощает из поля лазерного излучения с длиной волны около 10 мкм 5–10 квантов, его размер уменьшается на 1000–2000 атомов. Если размеры допированных молекулами кластеров гелия в пучке составляют

около $(2-3) \cdot 10^3$ атомов, то поглощение ИК-фотонов приведет к существенному уменьшению их размеров. Если же размеры кластеров меньше 10^3 атомов, то после возбуждения может иметь место полная их фрагментация и образование свободных (полностью «раздетых») молекул SF_6 . Следовательно, ИК-возбуждение приведет к существенному изменению распределения кластерного пучка по размерам по сравнению с распределением в исходном пучке. При этом селективно возбужденные кластеры будут иметь значительно меньший размер, чем невозбужденные.

Следующий этап заключается в селекции кластеров по размерам. Для этого используется процесс рассеяния кластерного пучка на вторичном молекулярном (либо атомном) пучке [31–33], который пересекает кластерный пучок после возбуждения лазером, на расстоянии $\Delta x_0 + \Delta x_1$ от сопла (рис. 1). В качестве рассеивающего пучка можно использовать пучок атомов ксенона или криптона. Рассеяние на вторичном пучке приводит к разложению кластерного пучка по углу [31], т. е. к отклонению кластеров разного размера на разные углы. Процесс рассеяния кластеров гелия на вторичном пучке характеризуется тем, что сталкивающиеся с капелькой частицы захватываются ею [31–33]. Момент количества движения частицы передается капельке. Капелька нагревается, и из нее, как и в случае лазерного возбуждения, испаряется определенное число атомов, которое определяется энергией захваченной частицы. В случае одноатомного газа из кластера испаряется около 100–200 атомов, а в случае многоатомных молекул, как, например, SF_6 , из капельки испаряется более 600 атомов [32]. В процессе рассеяния на пересекающемся пучке кластеры гелия меньшего размера отклоняются на большие углы. Следовательно, путем селективного возбуждения молекул внутри кластеров гелия мощным лазерным ИК-излучением и последующего отклонения кластеров разного размера на разные углы можно проводить селекцию молекул, внедренных в наноклапельки гелия. Ниже мы рассмотрим процедуру вычислений и на примере молекул SF_6 проведем анализ возможностей указанного метода для селекции молекул по изотопному составу.

3. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

3.1. Распределение кластеров по размерам и процедура вычислений

Распределение кластеров по размерам в пучке определяется log-нормальным распределением [31, 32, 34, 35]:

$$f(N) = \frac{1}{N\sigma\sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{(\ln N - \mu)^2}{2\sigma^2}\right). \quad (2)$$

Это распределение является гауссовым в системе координат, в которой ось абсцисс является логарифмической. Средняя величина \bar{N} и стандартное отклонение S даются выражениями

$$\bar{N} = \exp(\mu + \sigma^2/2), \quad S = \bar{N}\sqrt{\exp(\sigma^2) - 1}, \quad (3)$$

где

$$\mu = \ln\left(\frac{\bar{N}^2}{\sqrt{S^2 + \bar{N}^2}}\right), \quad \sigma^2 = \ln\left(\frac{S^2}{\bar{N}^2} + 1\right).$$

Максимум распределения N_{max} и функциональная зависимость $f(N_{max})$ определяются [31, 35] следующим образом:

$$N_{max} = \exp(\mu - \sigma^2),$$

$$f(N_{max}) = \frac{1}{\sigma\sqrt{2\pi}} \exp\left(\frac{\sigma^2}{2} - \mu\right). \quad (4)$$

Полуширина асимметричного распределения равна

$$\Delta N_{1/2} = \exp\left(\mu - \sigma^2 + \sigma\sqrt{\ln 4}\right) - \exp\left(\mu - \sigma^2 - \sigma\sqrt{\ln 4}\right). \quad (5)$$

Она примерно равна среднему размеру кластеров [31].

В качестве отправной точки в вычислениях мы возьмем log-нормальное распределение $f(N)$ с взаимосвязанными параметрами $N_{max} = 1800$, $\bar{N} = 2846$ и $S = 1701$. Для простоты мы нормируем распределение к единице:

$$\int f(N) dN = 1.$$

Это распределение является довольно близким к распределению, полученному экспериментально в работе [31]. Довольно узкое распределение мы взяли с той целью, чтобы получить более высокую селективность (см. ниже п. 3.3). Мы проанализируем трансформацию распределения кластеров по размерам в следующих процессах: 1) захват молекул в камере для допирования кластеров, 2) селективное возбуждение лазером и 3) захват атомов из рассеивающего пучка. Далее мы получим соотношения для определения селективности и эффективности процесса разделения.

Вероятности процессов захвата молекул и атомов пропорциональны поперечному сечению σ_N кластера или $N^{2/3}$ (поскольку $\sigma_N \sim N^{2/3}$). Сначала мы

рассмотрим трансформацию распределения в процессе допирования. В случае кластеров, допированных одиночными молекулами, распределение по размерам будет выглядеть следующим образом:

$$f_s(N) = f(N) \left(\frac{N}{\bar{N}}\right)^{2/3} \frac{1}{\int f(N) \left(\frac{N}{\bar{N}}\right)^{2/3} dN}. \quad (6)$$

Последний множитель в соотношении (6) введен для того, чтобы восстановить нормировку. Испарение m атомов из каждого кластера, вызванное допированием кластеров одиночными молекулами, в простейшем случае будет приводить к «смещению» распределения кластеров по размерам:

$$f_{s1}(N) = f_s(N + m).$$

После возбуждения кластеров лазером и испарения L молекул из каждого кластера распределение будет иметь вид

$$f_{s1L}(N) = f_{s1}(N + L). \quad (7)$$

Но теперь

$$\int f_{s1L} dN \neq 1.$$

В случае $L = 1200$ интеграл

$$\int f_{s1L} dN = I1L$$

примерно равен 0.95. В процессе рассеяния отклоняющим атомным пучком это распределение будет деформировано снова. И мы будем иметь:

$$f_{s1Ls}(N) = f_{s1L}(N) \left(\frac{N}{\bar{N}}\right)^{2/3} \times \frac{\int f_{s1L} dN}{\int f_{s1L} \left(\frac{N}{\bar{N}}\right)^{2/3} dN}. \quad (8)$$

Аналогичная трансформация будет иметь место и для невозбужденных кластеров. Последний множитель в соотношении (8) так же, как и в случае соотношения (6), взят с целью восстановления нормировки распределения. Мы не рассматриваем изменение распределения кластеров по размерам, связанное с испарением атомов гелия, вызванным захватом атомов из отклоняющего пучка, поскольку это изменение не влияет на угол отклонения кластеров.

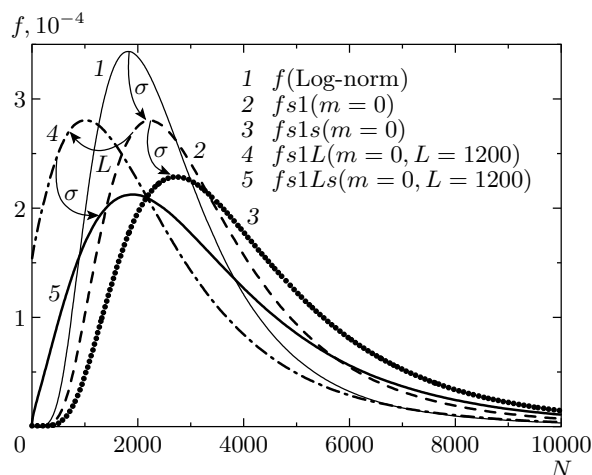


Рис. 2. Трансформация распределения кластеров гелия по размерам в пучке. Детали см. в тексте

Рисунок 2 демонстрирует трансформацию распределения кластеров по размерам в названных выше процессах. На нем показано log-нормальное распределение до захвата молекул (кривая 1), после захвата молекул с нулевой энергией ($m = 0$, кривая 2) и после захвата молекул, а также атомов из отклоняющего атомного пучка (кривая 3). Кривая 4 показывает распределение кластеров по размерам после захвата молекул и лазерного возбуждения, а кривая 5 — после захвата молекул, лазерного возбуждения и захвата атомов. Полную величину индуцированного лазером эффекта можно увидеть, сравнивая распределения 3 и 5. Из рис. 2 следует, что в идеальном случае (когда $m = 0$) разница между распределениями 3 (без лазерного возбуждения) и 5 (при лазерном возбуждении) очень большая, особенно в области малых значений N . На рис. 3 показаны log-нормальное распределение (кривая 1) и распределения (кривые 2 и 3, соответственно), которые являются аналогичными распределениям 3 и 5, показанным на рис. 2, для случая захвата молекул SF₆ ($m = 680$). Видно, что в этом случае индуцированный лазером эффект менее выражен. Тем не менее имеет место довольно большое различие между распределениями 2 и 3.

При отклонении кластерного пучка (с моментом кластера $Nm_{He}v_1$) монохроматическим атомным пучком (с моментом атома m_2v_2) угол отклонения будет составлять (см. п. 3.2):

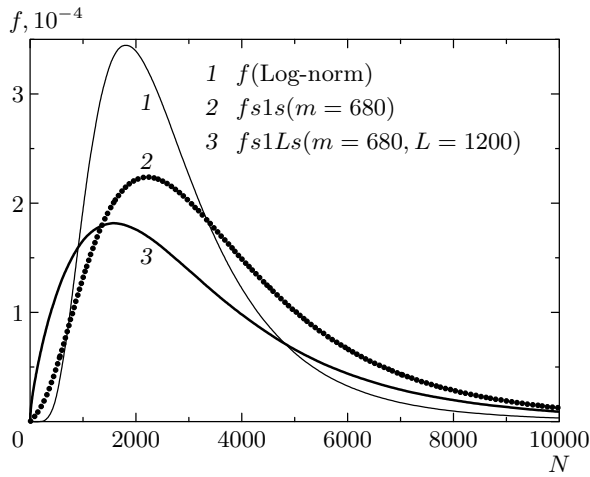


Рис. 3. Log-нормальное распределение кластеров гелия по размерам (кривая 1) и распределение, формирующееся после захвата энергичных молекул ($m = 680$) и атомов из отклоняющего пучка (кривая 2). Кривая 3 представляет собой распределение после захвата энергичных молекул ($m = 680$), лазерного возбуждения и захвата атомов из отклоняющего пучка

$$\theta \approx \frac{m_2 v_2}{N m_{\text{He}} v_1}, \quad N = \frac{m_2 v_2}{\theta m_{\text{He}} v_1} = \frac{k_0}{\theta}, \quad (9)$$

$$k_0 = \frac{m_2 v_2}{m_{\text{He}} v_1}.$$

Трансформация распределения кластеров по размерам в распределение по углам будет представлена следующим образом:

$$f(N) dN \rightarrow f\left(\frac{k_0}{\theta}\right) \frac{k_0}{\theta^2} d\theta = G(\theta) d\theta. \quad (10)$$

При этом должно выполняться следующее соотношение:

$$\int f(N) dN = \int G(\theta) d\theta. \quad (11)$$

Чтобы получить соотношения для определения селективности и эффективности процесса, необходимо учесть следующие преобразования:

$$fs1Ls(N) \rightarrow G1L(\theta), \quad fs1s(N) \rightarrow G1(\theta).$$

В случае допированных одиночными молекулами кластеров распределенная по углу (дифференциальная) селективность будет определяться соотношением

$$S1(\theta) = \frac{G1L(\theta)}{G1(\theta)}. \quad (12)$$

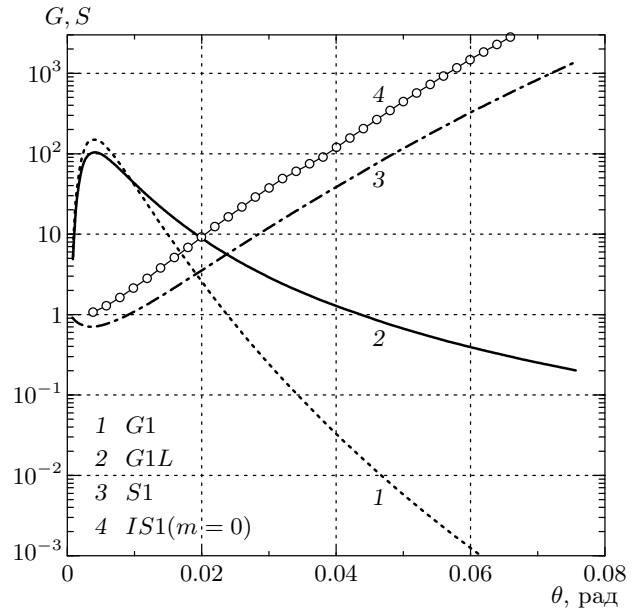


Рис. 4. Угловые распределения допированных кластеров гелия (для случая $m = 0$) без лазерного возбуждения (кривая 1) и при лазерном возбуждении (кривая 2). Кривые 3 и 4 показывают соответственно дифференциальную и интегральную селективности

Введем для простоты интегральные функции типа

$$IG(\theta) d\theta \equiv \int_{\theta}^1 G(\zeta) d\zeta. \quad (13)$$

Если все допированные кластеры, отклоненные на углы, большие чем θ , будут собраны, то можно ввести интегральную селективность, которая определяется как

$$IS1(\theta) = \frac{IG1L(\theta)}{IG1(\theta)}. \quad (14)$$

Эффективность процесса можно определить следующим образом

$$E1(\theta) = \frac{IG1L(\theta)}{IG1L(0)}. \quad (15)$$

Аналогичные вычисления нами были выполнены также с целью учета влияния захвата двух молекул на селективность и эффективность процесса. Некоторые результаты этих вычислений будут приведены в п. 3.3. На рис. 4 показаны угловые распределения допированных кластеров (для случая $m = 0$) без лазерного возбуждения (кривая 1) и при лазерном возбуждении (кривая 2). На этом же рисунке приведена также дифференциальная селективность

(кривая 3) и интегральная селективность (кривая 4). Из результатов, представленных на рис. 4, следует, что в предельном (идеальном) случае (когда $m = 0$), формируется довольно высокая селективность.

3.2. Применение к молекулам SF₆

В качестве конкретного примера рассмотрим кластеры гелия, внутри которых находятся молекулы SF₆. Содержание изотопов серы в природном газе SF₆ составляет: ³²S — 95.02%, ³³S — 0.75%, ³⁴S — 4.2% и ³⁶S — 0.017% [36]). Изотоп-сдвиг в полосе колебания ν_3 примерно равен 8.5 см⁻¹ на одну атомную единицу массы [37]. Спектр поглощения колебания ν_3 молекул ³²SF₆ внутри капелек гелия довольно хорошо изучен [24–26]. Центр полосы находится в области 946.55 см⁻¹, а ее полная ширина составляет около 0.25 см⁻¹ [24–26]. Указанная полоса поглощения хорошо совпадает с 10.6 мкм полосой генерации CO₂-лазера. В частности, линия 10R(50) лазера на молекулах ¹³CO₂ (946.54 см⁻¹) и линия 10R(35) лазера на молекулах ¹⁶O¹³C¹⁸O (946.64 см⁻¹) хорошо попадают в резонанс с полосой поглощения молекул ³²SF₆, находящихся внутри сверхтекучих капелек гелия. Некоторые линии излучения CO₂-лазера попадают в резонанс с колебанием ν_3 других изотопомеров SF₆ внутри капелек гелия. Вместе с тем следует отметить, что оптимальными для селективного возбуждения молекул внутри кластеров сверхтекучего гелия являются перестраиваемые по частоте ИК-лазеры, в частности, CO₂-лазеры высокого давления с плавной перестройкой частоты и лазеры на центрах окраски.

Отметим, что для эффективного возбуждения кластеров необходима довольно высокая интенсивность излучения, для того чтобы скорость возбуждения была сопоставима со скоростью релаксации энергии, т. е.

$$\sigma I \tau_{V-T} \approx 1, \quad (16)$$

где σ — сечение поглощения SF₆ в кластере гелия, I — интенсивность излучения [фотон/см² · с], а τ_{V-T} — время релаксации энергии возбуждения. Кроме того, чтобы кластеры могли поглотить, например, в среднем примерно по пять квантов, длительность возбуждающего импульса τ_p должна удовлетворять условию

$$\tau_p \geq 10\tau_{V-T}.$$

Если считать, что сечение поглощения SF₆ внутри кластеров гелия равно газокинетическому сечению

молекулы ($\sigma \approx 2.4 \cdot 10^{-15}$ см² [38]), а время релаксации энергии внутри кластера τ_{V-T} составляет 0.56 нс [26], то в соответствии с соотношением (16) интенсивность лазерного излучения должна составлять $I \geq 7 \cdot 10^{23}$ фотон/см² · с. Условие (16) легко реализуется, если для возбуждения кластеров использовать CO₂-лазер с энергией в импульсе $E \geq 10^{-2}$ Дж и длительностью импульса порядка 100 нс.

Рассмотрим теперь более подробно процесс отклонения кластеров при рассеянии на молекулярном (атомном) пучке. Как отмечено выше, при столкновении молекулы с кластером сверхтекучего гелия происходит захват молекулы и передача ее момента кластеру [31–33]. Для кластера гелия массой $m_1 = Nm_{\text{He}}$, имеющего скорость v_1 , который сталкивается с частицей массой m_2 , имеющей скорость v_2 , во вторичном пучке при угле между двумя пучками, равном α , угол отклонения кластера θ определяется из соотношения

$$\text{tg } \theta = \frac{\sin \alpha}{m_1 v_1 / m_2 v_2 + \cos \alpha}. \quad (17)$$

Пусть в качестве рассеивающего пучка используется пучок атомов ксенона ($m_2 = 131.3$ а.е.м., $v_2 \approx 300$ м/с). В этом случае, т. е. когда $m_1 \gg m_2$, ($m_1 = 8000$ а.е.м.), $v_1 \approx 1.6v_2$ ($v_1 \approx 480$ м/с [31]) и угол θ небольшой, с довольно большой точностью можно получить

$$\theta = \frac{m_2 v_2}{Nm_{\text{He}} v_1} \sin \alpha = \frac{1}{N} \frac{m_2}{m_{\text{He}}} \frac{v_2}{v_1} \sin \alpha. \quad (18)$$

Если угол между пучком кластеров гелия и пучком атомов ксенона составляет $\alpha = 90^\circ$, то согласно соотношению (18), кластеры гелия с числом атомов $N \approx 2000$ будут отклоняться на угол $\theta \approx 0.56^\circ$ (0.01 рад.). В проведенных выше оценках мы пренебрегли массой молекулы SF₆, внедренной в капельку гелия, по сравнению с массой капельки. Селективность процесса разделения, например, молекул ³²SF₆ и ³⁴SF₆, которая определяется соотношением

$$S = \frac{[^{32}\text{SF}_6]^* / [^{34}\text{SF}_6]^*}{[^{32}\text{SF}_6]^0 / [^{34}\text{SF}_6]^0}, \quad (19)$$

будет больше единицы в области углов $\theta \geq 0.01$ рад, и меньше единицы в области меньших углов (кривая 3 на рис. 4). В квадратных скобках в соотношении (19) приведены концентрации молекул, отклоненных на угол θ (обозначены звездочкой), и концентрации молекул в исходном газе.

Отметим, что свободные молекулы SF₆, которые образуются при возбуждении и последующем

испарении небольших допированных кластеров гелия, будут отклоняться атомами ксенона (в случае прямого попадания) на угол $\theta \approx 30^\circ$. Вместе с тем следует отметить, что вероятность рассеяния молекул SF_6 атомами ксенона существенно меньше вероятности рассеяния кластеров из-за довольно большой разницы в сечениях для этих частиц ($\sigma_{\text{SF}_6} \approx 2.4 \cdot 10^{-15} \text{ см}^2$ [38], $\sigma_N = \sigma_0 N^{2/3}$ [19], где $\sigma_0 \approx 2.2 \cdot 10^{-15} \text{ см}^2$ [19] — эффективное сечение атома гелия в кластере, а σ_N — сечение кластера гелия). Например, поперечное сечение кластера гелия с числом атомов $N = 1000$ составляет $\sigma_N \approx 2.08 \cdot 10^{-13} \text{ см}^2$, а с числом атомов $N = 100$ — $\sigma_N \approx 6 \cdot 10^{-14} \text{ см}^2$ [19]. Поэтому большая часть молекул SF_6 не будет отклонена пучком атомов ксенона, а останется в прямом пучке. Кластеры большого размера ($N \geq 10^4$), которые, согласно соотношениям (17) и (18), отклоняются на очень малые углы ($\theta \leq 0.1^\circ$), также останутся практически в прямом пучке. Именно поэтому эксперименты предпочтительно проводить с пучками кластеров со средним размером $\bar{N} \approx (1-3) \cdot 10^3$, для того чтобы возбужденные кластеры отклонялись на сравнительно большие углы $\theta \geq 2^\circ-3^\circ$. Кроме того, кластеры малого размера легче испаряются, поскольку у них меньше энергия связи атомов. Пучок кластеров малого размера имеет также более узкую ширину распределения [31], что позволяет реализовать более высокую селективность процесса разделения кластеров по размерам при отклонении вторичным пучком. Следует отметить, что из-за довольно большой массы кластеров гелия углы отклонения их рассеивающим пучком сравнительно малы ($1^\circ-2^\circ$). Поэтому эксперименты предпочтительно проводить с хорошо коллимированными кластерными пучками [31]. Кроме того, необходимо реализовать сравнительно большие пролетные расстояния ($\Delta x_2 \geq 50 \text{ см}$) после рассеивающего пучка, чтобы получить высокое угловое разрешение (см. рис. 1). Следует отметить также, что в случае использования импульсных ИК-лазеров целесообразно проводить эксперименты с модулированными кластерными пучками, для того чтобы реализовать примерно одинаковую скважность для лазерного и кластерного пучков и за счет этого получить более высокий контраст при селекции молекул.

3.3. Факторы, влияющие на селективность и эффективность процесса

Рассмотрим теперь основные факторы, которые влияют на селективность и эффективность (произ-

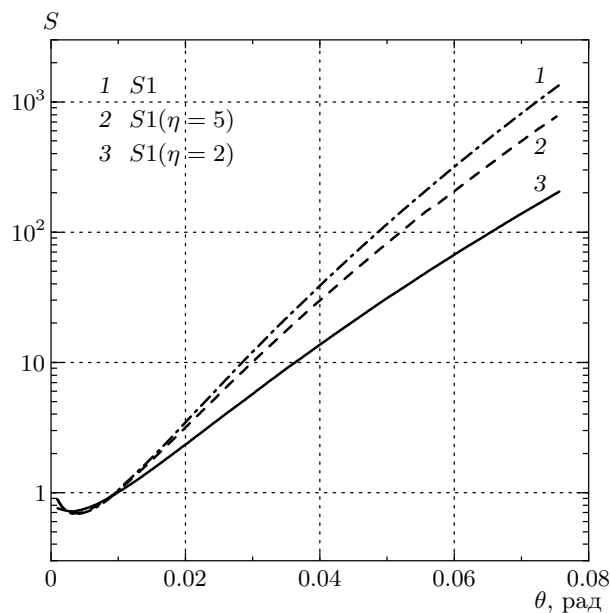


Рис. 5. Угловые зависимости дифференциальной селективности для случая монохроматического отклоняющего атомного пучка ($\eta = \infty$, кривая 1) и для атомных пучков, характеризующихся параметрами $\eta = 5$ (кривая 2) и $\eta = 2$ (кривая 3) (см. текст)

водительность) рассматриваемого процесса. Одним из факторов, приводящих к уменьшению селективности процесса, является конечная ширина скоростного распределения атомов ксенона в рассеивающем пучке. Мы исследовали зависимость селективности от «степени монохроматичности» рассеивающего атомного пучка. В качестве меры «степени монохроматичности» пучка мы взяли отношение η средней скорости атомов в пучке к разбросу скоростей, т. е.

$$\eta = \bar{v} / \Delta v.$$

Результаты приведены на рис. 5. Видно, что при значениях $\eta \geq 5$ селективность мало отличается от селективности для случая монохроматического пучка (см. кривые 1 и 2). Лишь при очень большом разбросе атомов по скоростям (когда $\eta \leq 2$) селективность значительно (примерно в три раза) меньше, чем в случае монохроматического пучка. Поскольку в экспериментах обычно легко реализуются значения $\eta \geq 5$, можно считать, что скоростное распределение атомов в пучке слабо влияет на селективность процесса. Отметим здесь также, что сами кластерные пучки гелия характеризуются весьма узкими скоростными распределениями ($\eta \geq 50$, см., например, [31–33]). Поэтому влиянием рассматрива-

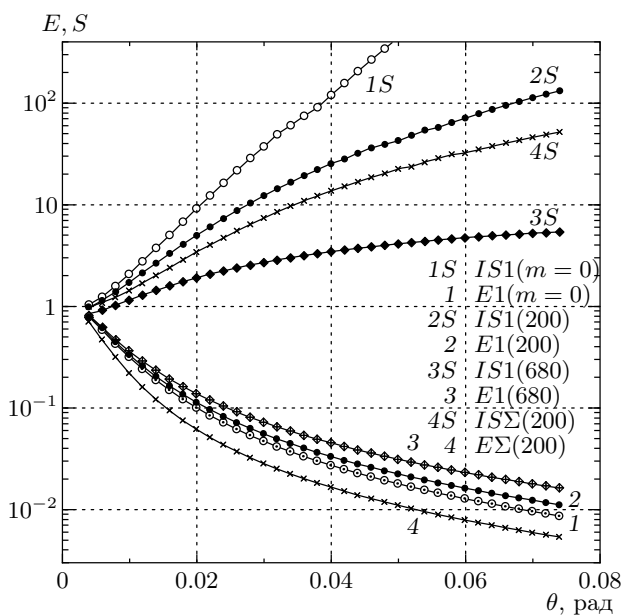


Рис. 6. Угловые зависимости эффективности (кривые 1–3) и интегральной селективности (кривые 1S–3S) для различного числа испаряющихся атомов гелия при захвате молекул ($m = 0, 200$ и 680). Кривые 4 и 4S показывают угловые зависимости эффективности и селективности для случая кластерного пучка, содержащего однократно и двукратно допированные кластеры в соотношении 2 : 1 ($m = 200$)

емого параметра на селективность процесса можно пренебречь.

Основным фактором, приводящим к понижению селективности, является неселективное тепловое испарение атомов, вызванное процессом захвата энергетических молекул. Рисунок 6 демонстрирует этот эффект. На нем показаны зависимости интегральной селективности и эффективности от угла для случаев трех различных чисел испаряющихся атомов ($m = 0, 200$ и 680). Видно, что селективность резко уменьшается при увеличении числа испаряющихся атомов гелия. Из приведенных результатов следует, что в случае больших молекул (таких, как SF_6, OsO_4 и UF_6) желательно охлаждать газ в камере захвата. Например, захват молекулы SF_6 при температуре 150 К будет приводить к испарению из кластера только около 160–170 атомов. Как следует из результатов, приведенных на рис. 6, в этом случае интегральная селективность при углах $\theta \geq 0.04$ рад будет примерно на порядок больше по сравнению со случаем захвата молекулы при комнатной температуре.

Конечная протяженность области взаимодействия Δx_{int} кластерного пучка с рассеивающим атомным пучком ($\Delta x_{int} \approx 1$ см) также может привести к некоторому уменьшению селективности процесса. Однако при сравнительно больших расстояниях Δx_2 от области взаимодействия до приемника (или щели) ($\Delta x_2 \geq 50$ см) это уменьшение незначительно (порядка $\Delta x_{int}/\Delta x_2$), и оно становится еще меньше с увеличением расстояния Δx_2 .

Рассмотрим теперь факторы, влияющие на эффективность процесса. Уменьшение эффективности (а также селективности) связано, прежде всего, с тем, что вероятность процесса захвата кластерами гелия частиц примеси определяется пуассоновским распределением [32]:

$$P(N) = N_0 \frac{(n\sigma L)^N}{N!} \exp(-n\sigma L), \quad (20)$$

где N_0 — амплитудный фактор, n — плотность числа частиц в камере захвата, σ — поперечное сечение захвата и L — длина ячейки. Поэтому лишь часть кластеров гелия в пучке является допированной одиночными молекулами. В зависимости от условий эксперимента (давления газа и длины пути взаимодействия в камере захвата) в кластерном пучке может содержаться довольно много капелек гелия, захвативших по две или более молекул SF_6 , которые образуют кластеры SF_6 внутри капельки. Отметим, что кластеры гелия, захватившие более чем по одной молекуле, будут иметь меньшие размеры по сравнению с однократно допированными кластерами, поскольку с них испаряется больше атомов. При рассеянии кластерного пучка на атомном пучке они будут отклоняться на большие углы, что может привести к существенному уменьшению селективности процесса. Поэтому эксперименты необходимо проводить в условиях, когда доля кластеров гелия, содержащих внутри себя несколько молекул SF_6 , минимальна. При этом значительно уменьшается и полное число допированных кластеров гелия в пучке. Естественно, это приводит к уменьшению эффективности процесса. Например, расчеты показывают (см. рис. 6), что если доля кластеров, захвативших по две молекулы, составляет примерно 50 % от доли кластеров, захвативших по одной молекуле, то оба параметра — селективность и эффективность — (при углах $\theta \geq 0.02$ рад) примерно в два раза меньше, чем в случае однократно допированных кластеров.

Рассмотрим также влияние на эффективность и селективность процесса двукратных столкновений кластеров гелия с атомами отклоняющего пучка. При достаточно высокой плотности частиц (и/или

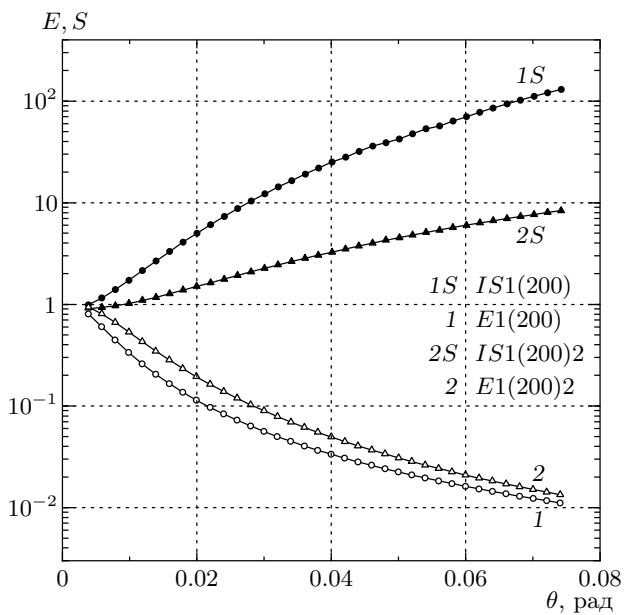


Рис. 7. Угловые зависимости интегральной селективности (кривые 1S и 2S) и эффективности (кривые 1 и 2) для случая однократных (кривые 1S и 1) и двукратных (кривые 2S и 2) столкновений кластеров с атомами рассеивающего атомного пучка. Число испаряющихся атомов гелия при захвате молекул $m = 200$ и при захвате атомов — $m_1 = 200$

длины взаимодействия Δx_{int}) в отклоняющем атомном пучке вторичные столкновения кластеров гелия с атомами вполне возможны. Это, естественно, повлияет на селективность и эффективность процесса. По сути двукратные столкновения должны приводить к такому же эффекту, как если бы кластерный пучок дважды рассеивался на том же атомном пучке. Поэтому в расчетах необходимо учесть испарение из кластеров примерно 200 атомов гелия ($m \approx 200$ при захвате атома ксенона из пучка [32]) в результате захвата первого атома из рассеивающего пучка, а также трансформацию распределения (умножение на $N^{2/3}$) в результате захвата второго атома.

Мы не будем приводить здесь довольно громоздкие формулы, связанные с последовательной трансформацией указанных распределений, а приведем и проанализируем наиболее пессимистический результат, который получается непосредственно при трансформации распределений кластеров по размерам, полученных с учетом указанных выше факторов, в распределение по углу. Однако, поскольку полный угол отклонения кластеров при двукратных столкновениях примерно в два раза больше, вместо вели-

чины k_0 в соотношениях (9) и (10) мы взяли величину $2k_0$. Полученные с учетом всех указанных выше факторов результаты для селективности и эффективности процесса приведены на рис. 7 (кривые 2S и 2) совместно с данными для случая однократных столкновений (кривые 1S и 1). Видно, что двукратные столкновения приводят к значительному уменьшению селективности и незначительному росту эффективности по сравнению с однократными столкновениями. Так, например, при одинаковой эффективности $E = 0.1$ селективность в случае двукратных столкновений примерно в 2.5 раза меньше. Из этих результатов следует, что для получения более высокой селективности эксперименты необходимо проводить в условиях, когда число двукратных столкновений мало (в условиях, когда плотность атомов в отклоняющем пучке сравнительно низка).

3.4. Оценки выхода обогащенных продуктов

В связи с потенциальной возможностью применения на практике рассматриваемого процесса для разделения изотопов представляет интерес провести оценки выхода «обогащенных продуктов». Отметим сразу, что речь может идти лишь об очень грубой оценке. Поэтому приведенные ниже значения не могут служить в качестве исходных данных для расчета реальной производительности процесса. Для такого расчета необходимы, прежде всего, экспериментальные результаты. Тем не менее мы полагаем, что даже грубая оценка выхода продуктов представляется целесообразной.

В оценках мы будем исходить из интенсивностей реально получаемых кластерных пучков гелия и производительности используемых для этого диффузионных насосов [5, 9]. Следует отметить, что из-за слабой энергии связи атомов в небольших гелиевых кластерах (см. разд. 2) для образования кластеров обычно требуются высокие плотности и низкие температуры газа в зоне расширения [5]. Оба этих параметра приводят к большому потоку газа. Поэтому в установках для получения жидких капелек гелия требуются большие насосы (большие скорости откачки) и/или очень маленькие отверстия сопла. Поток газа пропорционален величине $p_0 d^2 T_0^{-1/2}$, где d — диаметр отверстия сопла, а p_0 и T_0 — соответственно давление и температура газа над соплом. Обычно в установках для получения жидких нанокапелек гелия диаметр отверстия сопла составляет от 5 до 20 мкм, давление — от 1 до 20 атм, а температура — от 10 до 30 К [5, 9].

В приближении идеального газа сопло с диаметром отверстия 10 мкм при $T_0 \approx 20$ К и $p_0 \approx 15$ атм обеспечивает поток газа, эквивалентный потоку, который обеспечивает сопло с диаметром отверстия 50 мкм, работающее при комнатной температуре и давлении газа 2 атм [5]. Этот поток составляет примерно $4 \text{ атм} \cdot \text{см}^3/\text{с}$ (≈ 0.16 ммоль/с). Чтобы реализовать откачку такого потока газа, требуются диффузионные насосы, обеспечивающие скорость откачки около 10000 л/с для He (≈ 4000 л/с для азота) при предельном рабочем давлении около $3 \cdot 10^{-4}$ Торр. Обычно в таких установках получают нанокпельки гелия с числом атомов несколько тысяч [5].

Возьмем для оценок в качестве исходной величины указанный выше поток газа, а именно $4 \text{ атм} \cdot \text{см}^3/\text{с}$. Это соответствует примерно 10^{20} частиц/с. Пусть средний размер кластеров в пучке составляет $\bar{N} = 10^3$. Если бы все кластеры гелия в пучке были допированы единичными молекулами SF_6 , то поток молекул SF_6 составил бы 10^{17} молекул/с. Учтем теперь факторы, которые приводят к уменьшению этого значения. Пусть поток газа сформирован с помощью двумерного (щелевого) сопла с шириной щели 50 см. Отметим, что именно такого типа сопла используются, например, при исследовании возбуждения и изотопически-селективной многофотонной ИК-диссоциации молекул UF_6 [39] или SF_6 [40]. Для селекции молекул рассматриваемым методом также желательно использовать щелевые сопла (см. п. 3.3). При формировании узконаправленного пучка из струи можно выделить около 10 % кластеров. Одиночными молекулами можно допировать не более 20 % кластеров. Рассмотрим случай работы с непрерывным кластерным пучком, когда для возбуждения кластеров используется импульсный CO_2 -лазер, работающий с частотой повторения импульсов $f \approx 500$ Гц. Отметим, что CO_2 -лазеры с указанной частотой повторения импульсов применяются на практике для лазерного разделения изотопов углерода [41, 42].

Доля облучаемых кластеров в пучке (скважность процесса облучения) составляет величину

$$c_f = \frac{\Delta x_{irr} f}{v_1}.$$

Здесь Δx_{irr} и v_1 — соответственно протяженность облучаемого объема и скорость кластерного пучка. Скорость пучка примерно составляет $v_1 \approx 500$ м/с [31, 32]. Если энергия лазерного импульса равна, например, 2 Дж, а лазерный луч направлен перпендикулярно скорости движения кластерного пучка, то легко можно реализо-

вать протяженность облучаемого пространства $\Delta x_{irr} \approx 20$ см (или сечение лазерного пучка $20 \times 1 \text{ см}^2$ в зоне облучения). При этом поток энергии составит около $0.1 \text{ Дж}/\text{см}^2$, что на порядок превышает плотность потока энергии, необходимой для эффективного возбуждения кластеров (см. соотношение (16)). Поэтому скважность облучения составит величину $c_f \approx 0.2$. И, наконец, необходимо учесть, что в процессе рассеяния кластеров на атомном пучке в результате однократных столкновений можно отклонить не более 20 % кластеров. Таким образом, реально мы будем иметь дело примерно с 10^{-3} частью кластеров в пучке, или с 10^{14} молекул SF_6 в секунду. Учтем теперь еще, что, например, при интегральной селективности $IS \approx 10$ эффективность процесса составляет $E \approx 0.1$ (см. кривые 2S и 2 на рис. 6 при $m = 200$). Следовательно, выход обогащенного продукта SF_6 составит около 10^{13} молекул/с или $3.6 \cdot 10^{16}$ молекул/час, что эквивалентно примерно 0.01 мг/час. Конечно, это очень низкая производительность, даже с учетом того, что приведенные оценки сделаны только для одной небольшой установки на основе одного диффузионного насоса. Вместе с тем следует отметить, что небольшие выходы продуктов характерны, например, и для разделения изотопов методом многофотонной ИК-диссоциации молекул в газодинамически охлажденных струях и потоках. Так, например, при лазерном разделении изотопов урана методом многофотонной ИК-диссоциации молекул UF_6 с целью более эффективного охлаждения газа в газодинамических потоках используется довольно обедненная смесь (отношение концентраций молекул UF_6 и газа-носителя составляет менее 0.01 [39, 43]). В то же время для эффективного возбуждения и диссоциации молекул требуются довольно высокие плотности потока лазерной энергии (по крайней мере, $\geq 1 \text{ Дж}/\text{см}^2$ для диссоциации предварительно возбужденных молекул), что приводит к уменьшению скважности облучения до величины порядка $c_f \leq 0.001$. Высокие значения селективности ($s \approx 3-5$), вероятно, можно получить лишь при малых выходах (≤ 0.01). Однако в случае разделения изотопов методом многофотонной ИК-диссоциации молекул в газодинамических потоках допустимо примерно на два порядка более высокое давление в камере (около 10^{-2} Торр). При этом можно реализовать примерно на два порядка более высокие потоки газа, т. е. около 10^{22} частиц/с. Проведенные нами оценки (с учетом всех указанных выше факторов) показывают, что выход продуктов может составить примерно 10^{15} молекул/с или

$3.6 \cdot 10^{18}$ молекул/час. Это примерно на два порядка больше, чем в случае с кластерным пучком. В то же время отметим, что в случае молекул, характеризующихся небольшим изотопным сдвигом, высокие селективности диссоциации достижимы только в многочастотных ИК-полях, что значительно усложняет процесс разделения изотопов. Кроме того, необходимо реализовать большие плотности потока энергии и значительно больший (более чем на два порядка) вклад лазерных фотонов на диссоциацию молекулы, что связано как с довольно большой энергией диссоциации, так и с малой селективностью процесса, когда большая часть лазерных фотонов тратится на возбуждение молекул, содержащих нецелевой изотоп. В случае же кластерных пучков для селективного возбуждения и диссоциации кластеров необходимо лишь одночастотное излучение лазера умеренной мощности. Поэтому одним лазером можно облучать сравнительно большие объемы, чем в случае диссоциации молекул. И, наконец, возможно получить более высокие селективности.

В связи с приведенными выше оценками отметим, что создание модулей промышленного типа для лазерного разделения изотопов урана методом многофотонной ИК-диссоциации молекул UF_6 считается (при современном уровне развития лазерной технологии) нерентабельным [44]. Необходимы дальнейшие исследования на существующих установках всего комплекса проблем, связанных как с развитием самих лазерных систем, так и оптимизацией газодинамических потоков. Поэтому рассматриваемые методы в настоящее время могут найти применение на практике, возможно, лишь для лазерного разделения либо экзотических молекул и/или небольших количеств вещества. Однако нельзя исключать возможность их более широкого применения в перспективе.

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Итак, результаты исследований показывают, что путем селективного возбуждения кластеров сверхтекучего гелия с внедренными внутри них молекулами интенсивным лазерным ИК-излучением и последующего отклонения кластеров разного размера на разные углы за счет рассеяния на атомном пучке можно проводить селекцию молекул по изотопному (компонентному) составу. С целью увеличения эффективности процесса предпочтительно исполь-

зовать для формирования кластерного пучка щелевое сопло и/или щелевые диафрагмы. Это позволяет существенно увеличить поперечные размеры пучка и, следовательно, число кластеров гелия в нем. В заключение следует отметить, что большим преимуществом сверхтекучих гелиевых капелек/кластеров для селекции молекул на основе описанного метода является, кроме низкой температуры кластеров и, как следствие, очень узких спектров поглощения молекул в них, очень малая энергия связи атомов в кластере (≤ 7.2 К) [19]), а также свободное вращение молекул в кластерах. Следствием первого фактора является то, что при поглощении только одного ИК-фотона размер кластера уменьшается существенно. Более того, с уменьшением размера кластера уменьшается энергия связи атомов, что дополнительно снижает требования к энергии накачки.

Следует также подчеркнуть, что, в отличие, например, от метода изотопно-селективной многофотонной ИК-диссоциации молекул (см., например, работы [45–47] и приведенные в них ссылки), который применим только для многоатомных молекул, рассматриваемый метод применим также для небольших, в том числе двухатомных молекул. Благодаря свободному вращению спектры ИК-поглощения небольших (например, двух- и трехатомных) молекул внутри нанокапелек сверхтекучего гелия содержат отдельные узкие колебательно-вращательные линии [1, 5, 9], что позволяет высокоселективно возбуждать молекулы. Причем в процессе доширования кластеров гелия небольшими молекулами их распределение по размерам не будет столь сильно деформировано, как в случае больших молекул. В результате при лазерном возбуждении кластеров могут быть достигнуты более высокие значения селективности (см. рис. 6). Еще одним преимуществом рассматриваемого метода является возможность использования для селективного возбуждения молекул, внедренных в капельки, микроволнового излучения. Результаты экспериментов показывают (см., например, [5, 9] и ссылки в них), что при использовании мощного микроволнового излучения в процессах возбуждения молекул внутри капелек гелия и их испарения можно получить такие же эффекты, как и при использовании ИК-лазеров. Основными недостатками рассматриваемого метода являются довольно сложная техническая реализация и сравнительно низкая производительность. В конце отметим, что подробное описание метода получения пучков нанокапелек гелия и методов внедрения в них одиночных молекул (а также кластеров) можно найти в работах [1, 2, 5, 9].

Авторы признательны рецензенту за ценные замечания. Работа выполнена при частичной финансовой поддержке РФФИ (грант № 03-02-17067).

ЛИТЕРАТУРА

1. J. P. Toennies, A. F. Vilesov, and K. B. Whaley, *Physics Today* № 2, 31 (2001).
2. E. Lugovoj, J. P. Toennies, S. Grebenev et al., in *Spectroscopy of Single Molecules and Clusters Inside Superfluid Helium Droplets, in Atomic and Molecular Beams, The State of the Art 2000*, ed. by R. Compargue, Springer, Berlin (2000), p. 755.
3. S. Grebenev, M. Hartmann, A. Lindinger et al., *Physica B* **280**, 65 (2000).
4. S. Grebenev, B. G. Sartakov, J. P. Toennies, and A. F. Vilesov, *Science* **289**, 1532 (2000).
5. C. Callegary, K. L. Lehmann, R. Schmied, and G. Scoles, *J. Chem. Phys.* **115**, 10090 (2001).
6. F. Stienkemeier and A. F. Vilesov, *J. Chem. Phys.* **115**, 10119 (2001).
7. S. Grebenev, J. P. Toennies, and A. F. Vilesov, *Science* **279**, 2083 (1998).
8. J. P. Toennies and A. F. Vilesov, *Annu. Rev. Phys. Chem.* **49**, 1 (1998).
9. Г. Н. Макаров, *УФН* **174**, 225 (2004).
10. Y. Kwon, P. Huang, M. V. Patel, D. Blume, and K. B. Whaley, *J. Chem. Phys.* **113**, 6469 (2000).
11. J. A. Northby, *J. Chem. Phys.* **115**, 10065 (2001).
12. K. Nauta and R. E. Miller, *Science* **283**, 1895 (1999).
13. K. Nauta and R. E. Miller, *Science* **287**, 293 (2000).
14. E. Lugovoj, J. P. Toennies, and A. F. Vilesov, *J. Chem. Phys.* **112**, 8217 (2000).
15. N. Portner, A. F. Vilesov, and M. Havenith, *Chem. Phys. Lett.* **368**, 458 (2003).
16. V. N. Likhman and G. N. Makarov, *Chem. Phys. Lett.* **398**, 453 (2004).
17. M. Pi, R. Maiol, and M. Barranco, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 3093 (1999).
18. N. Portner, J. P. Toennies, and A. F. Vilesov, *J. Chem. Phys.* **117**, 6054 (2002).
19. S. A. Chin and E. Krotschek, *Phys. Rev. B* **52**, 10405 (1995).
20. P. Zindzinger, M. L. Klein, and D. M. Ceperley, *Phys. Rev. Lett.* **63**, 1601 (1989).
21. M. Casas, F. Dalfovo, A. Latri, L. I. Serra, and S. Stringari, *Z. Phys. D* **35**, 67 (1995).
22. M. V. Rama Krishna and K. B. Whaley, *J. Chem. Phys.* **93**, 746 (1990).
23. П. Л. Капица, *ЖЭТФ* **11**, 1, 581 (1941).
24. M. Hartmann, R. E. Miller, J. P. Toennies, and A. F. Vilesov, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 1566 (1995).
25. J. Harms, M. Hartmann, J. P. Toennies, and A. F. Vilesov, *J. Mol. Spectrosc.* **185**, 204 (1996).
26. M. Hartmann, N. Portner, B. Sartakov, J. P. Toennies, and A. F. Vilesov, *J. Chem. Phys.* **110**, 5109 (1999).
27. D. Brink and S. Stringari, *Z. Phys. D: At., Mol. Clusters* **15**, 257 (1990).
28. K. Nauta and R. E. Miller, *J. Chem. Phys.* **115**, 8384 (2001).
29. F. Madeja, P. Markwick, M. Havenith, K. Nauta, and R. Miller, *J. Chem. Phys.* **116**, 2870 (2002).
30. F. Dalfovo and S. Stringari, *J. Chem. Phys.* **115**, 10078 (2001).
31. M. Lewerenz, B. Schilling, and J. P. Toennies, *Chem. Phys. Lett.* **206**, 381 (1993).
32. M. Lewerenz, B. Schilling, and J. P. Toennies, *J. Chem. Phys.* **102**, 8191 (1995).
33. J. Gspann, *Z. Phys. B: Condens. Matter.* **98**, 405 (1995).
34. J. Harms, J. P. Toennies, and S. Dalfovo, *Phys. Rev. B* **58**, 3341 (1998).
35. H. Pauly, *Atom, Molecule, and Cluster Beams II, Cluster Beams, Fast and Slow Beams, Accessory Equipment and Applications*, Springer, New York (2000).
36. *CRC Handbook of Chemistry and Physics, 74th Ed.*, ed. by D. R. Lide, CRC Press, Boca Raton (1993–1994).
37. R. S. McDowell, J. B. Krohn, H. Flicker, and M. C. Vasquez, *Spectrochimica Acta A* **42**, 351 (1986).
38. I. Burak, J. I. Steinfeld, and D. G. Sutton, *J. Quant. Spectr. Rad. Trans.* **9**, 959 (1969).
39. Y. Okada, Y. Kuga, K. Sunouchi et al., *Appl. Phys. B* **59**, 475 (1994).

40. G. N. Makarov, E. Ronander, S. P. van Heerden et al., *Appl. Phys. B* **65**, 583 (1997).
41. В. Ю. Баранов, А. П. Дядькин, в кн. *Изотопы: свойства, получение, применение*, под ред. В. Ю. Баранова, ИздАТ, Москва (2000), с. 343.
42. А. П. Дядькин, В. Б. Зарин, В. Б. Лаптев и др., в кн. *Сборник докладов VIII Всеросс. (Международ.) научн. конф. «Физико-химические процессы при селекции атомов и молекул»*, Звенигород (2003), под ред. Ю. А. Колесникова, Изд-во ЦНИИАтоминформ, Москва (2003), с. 121.
43. K. Takeuchi, H. Tashiro, S. Kato et al., *J. Nucl. Sci. Technol.* **26**, 301 (1989).
44. В. Ю. Баранов, Е. И. Козлова, Ю. А. Колесников, А. А. Котов, в кн. *Изотопы: свойства, получение, применение*, под ред. В. Ю. Баранова, ИздАТ, Москва (2000), с. 357.
45. Г. Н. Макаров, А. Н. Петин, *ЖЭТФ* **119**, 5 (2001).
46. G. N. Makarov and A. N. Petin, *Chem. Phys.* **266**, 125 (2001).
47. Г. Н. Макаров, *УФН* **173**, 913 (2003).