Доклады Академии наук СССР
1955. Том 101, № 3

ТЕХНИЧЕСКАЯ ФИЗИКА

Н. Д. МОРГУЛИС, В. М. ГАВРИЛЮК и А. Е. КУЛИК

КОНДЕНСАЦИЯ МОЛЕКУЛЯРНОГО ПУЧКА НА ПОВЕРХНОСТИ МЕТАЛЛА

(Представлено академиком С. А. Векшинским 9 XII 1954)

Исследование элементарного процесса конденсации атомов или молекул на поверхности твердого тела находилось до настоящего времени в зачаточном состоянии вследствие того, что оно связано с необходимостью фиксации и измерения весьма малых количеств конденсирующегося вещества, для чего фактически нехватало экспериментальных средств. Исключением здесь был лишь один весьма ограниченный случай использования атомов, резко влияющих на работу выхода подложки, с применением методов катодной электроники, однако полученные здесь данные были весьма ограничены ([1]). Недавно для этой цели был применен новый метод ионизационного манометра со «вспышкой» ([2]), однако его точность и применимость являются также весьма ограниченными.

Новые широкие возможности исследования подобных процессов открывает использование методики меченых радиоактивных атомов. В литературе описан единственный пока случай подобного исследования ([3]) процесса конденсации Sb и Cd на поверхностях Cu, Al, стекла и слюды, однако результаты этих опытов весьма скудны и имеют несистематизированный характер. В связи с тем, что в процессе наших исследований ([4]) мы встретились с необходимостью тщательного изучения процесса конденсации продуктов испарения различных компонентов термоэлектронного оксидного метода на металлической и полупроводниковой поверхностях, мы провели настоящее исследование. Этот конкретный случай имеет также и самостоятельный интерес в связи с тем, что подобные пленки применяются для изучения измерения работы выхода и термоэлектронной эмиссии поверхностей, находящихся в электронных приборах с оксидными катодами, и для исследования скоростей испарения из этих катодов ([5]).

Объектом исследования был в основном конденсировавшийся на поверхности прокатанной и тщательно обезгаженной вольфрамовой ленты пучок молекул окиси стронция, меченных радиоактивным изотопом Sr^{89}; последний имеет период полураспада 55 дней и дает чистое β-излучение с энергией 1,32 и 1,50 Мэв. Испарение этих молекул $Sr^{89}O$ происходило из пассивного платинового испарителя при $T \approx 1350°$, когда плотность потока молекул у устья испарителя $\approx 10^{14} - 10^{15}$ см$^{-2}$ сек$^{-1}$. Степень однородности состава пучка, т. е. доля возможно присутствующих в нем атомов строения, полученных температурной диссоциацией молекул окиси стронция ([6]), была любезно определена у нас Л. С. Зайцевой по разработанной ею методике. При этом оказалось, что количество атомов стронция в пучке составляет очень малую долю, порядка нескольких процентов, т. е. пучок состоит в основном из молекул окиси стронция. Кроме того, были также определены по упрощенной методике в пределах примерно до трех молекулярных покрытий, коэффициенты конденсации атомов стронция (также при помощи изотопа Sr^{89}) из губчатого Л-катода

на поверхности вольфрама и молекул хлористого цезия (при помощи изотопа Cs^{134}) на поверхностях вольфрама, молибдена и никеля.

Схемы использованных в этой работе ламп приведены на рис. 1. В случае *а* молекулярный пучок падал на поверхность под скользящим углом в интервале 75—85° к нормали и ложился в виде клина, давая значение коэффициента конденсации k сразу для пяти разных степеней покрытия; в случае *б* пучок падал нормально к поверхности, давая одно значение k с наилучшей точностью; в случае *в* можно было изучать угловое распределение отраженных частиц. Описанные системы помещались в баллон со шлифом и находились под непрерывной откачкой при вакууме порядка 10^{-5}—10^{-6} мм. После нанесения соответствующей пленки лампы вскрывались и производилось определение активностей осадков, т. е. числа молекул как сконденсировавшихся на вольфрамовой ленте-приемнике n, так и отраженных от нее и осевших на коллекторах $(N - n)$, где N — их полное количество.

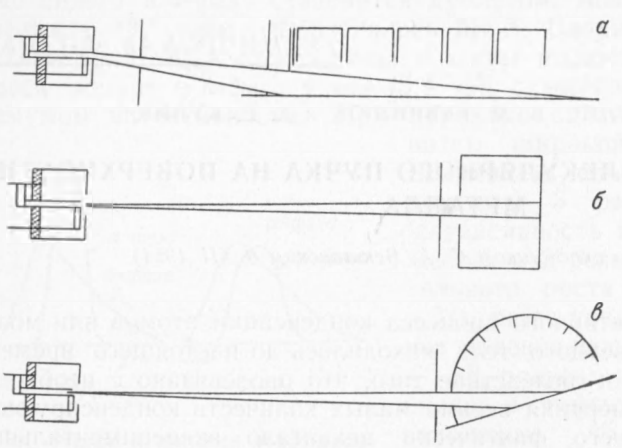


Рис. 1

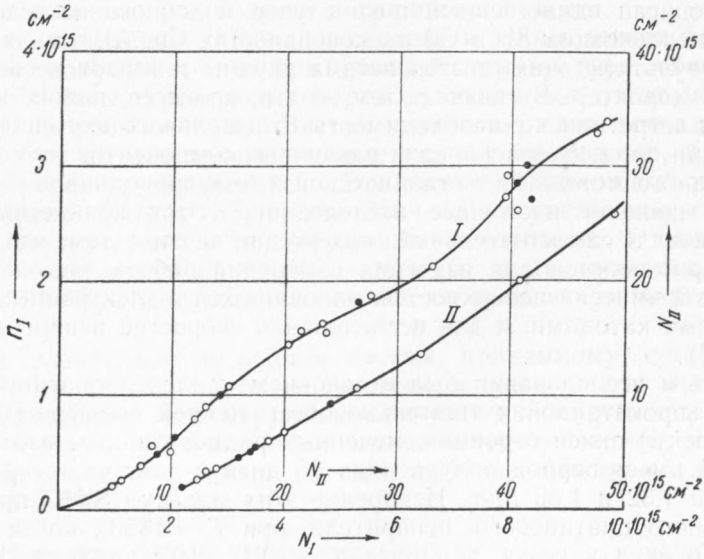


Рис. 2

Непосредственным результатом экспериментальных измерений является выяснение зависимости величины n от N. Эта зависимость изображена графически на рис. 2. На основании этих данных построен график рис. 3, где представлена зависимость коэффициента конденсации $k = n/N$ от величины фактического количества сконденсировавшихся молекул n. Для теоретической интерпретации полученных результатов имеет значение также и дифференциальный коэффициент конденсации

$\chi = dn/dN$, величину которого можно определить из рис. 2. Рассмотрение полученных результатов приводит нас к следующим выводам.

1. Коэффициент конденсации k молекулярного пучка из SrO на чистом W является весьма малой величиной ($\sim 0{,}10$—$0{,}15$), быстро нарастая при увеличении степени покрытия θ в пределах первого мономолекулярного слоя, для которого $n < 1 \cdot 10^{15}$ см$^{-2}$. Величина $\chi = dn/dN$ также изменяется здесь при $0 < \theta < 1$ в пределах примерно от 0,1 до 0,4. Точно

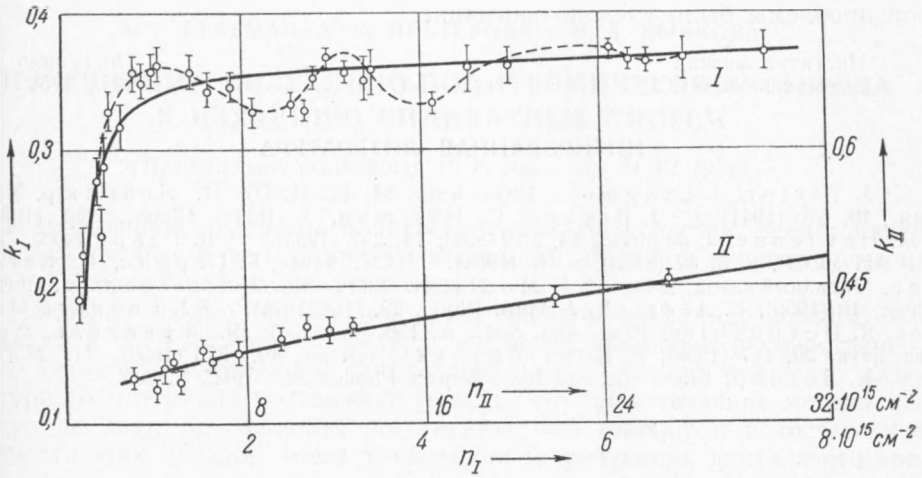


Рис. 3

подобная же по характеру зависимость получена нами и в указанных выше двух других исследованных случаях конденсации атомов Sr на W и молекул CsCl на W, Mo и Ni.

2. При дальнейшем наращивании пленки сверх $\theta = 1$, т. е. образовании полимолекулярной пленки, коэффициент конденсации k продолжает медленно нарастать в пределах полученных у нас значений $\theta \leqslant 30$. Вместе с тем, в области нескольких молекулярных слоев величина коэффициента конденсации обнаруживает признаки наличия какой-то периодической составляющей с периодом приблизительно порядка мономолекулярного покрытия.

3. Коэффициент конденсации k практически не зависит от угла падения молекулярного пучка на поверхность металла, во всяком случае в использованных нами пределах углов от 0 до $\approx 80°$ к нормали.

4. Распределение отраженных молекул по углам, полученное с конструкциями *а* и *в*, не имеет зеркального характера, т. е. практически одинаково «вперед» и «назад». Это обстоятельство находится в соответствии с критерием диффузности рассеяния отраженных частиц $\lambda < a$, где λ — фазовая длина волны отражаемой частицы (у нас $\lambda \approx 1{,}6$ Å), a — линейные размеры шероховатости отражающей поверхности.

Таким образом, как мы видим, процесс конденсации молекул и атомов на чистом металле происходит с большим затруднением даже тогда, когда так называемая «критическая» температура конденсации значительно ниже исследуемой. Повышение коэффициента конденсации, не говоря уже об известном методе осаждения в условиях газового рязряда, может быть также достигнуто, если к этому нет соответствующих препятствий, путем чернения поверхности приемника, как это принято в технике электронных измерений; например, в одном подобном случае у нас величина k возросла от $\approx 0{,}35$ до $\approx 0{,}8$.

В заключение мы хотим отметить весьма слабую теоретическую разработанность рассматриваемой проблемы ([7]), затрудняющую теоретическую интерпретацию полученных здесь экспериментальных результатов.

Имеющаяся в настоящее время не лишенная недостатков квантово-механическая теория явления конденсации применима лишь к случаю ван-дер-ваальсовской адсорбции, не имеющей, очевидно, места как в наших, так и в огромном количестве других важных случаев; кстати, и здесь возможно получение $k \ll 1$. Другой полуклассический вариант теории связывает коэффициент конденсации с коэффициентом аккомодации, теория которого также весьма мало разработана. Все это заставляет высказать пожелание о том, чтобы и теоретическим исследованиям этой важной проблемы было уделено внимание.

Институт физики
Академии наук УССР

Поступило
9 X 1954

ЦИТИРОВАННАЯ ЛИТЕРАТУРА

[1] J. Taylor, I. Langmuir, Phys. Rev., **44**, 423 (1933); И. Ленгмюр, Усп. хим., **10**, 570 (1941). [2] J. Becker, C. Hartman, J. Phys. Chem., 153 (1953). [3] M. Devienne, J. de phys., **13**, 53 (1952); **14**, 257 (1953). [4] В. Гаврилюк, Тр. ИФ АН УССР, в. 5, 87 (1953); в. 6 (1954). [5] См., напр., Г. Герман, С. Вагенер, Оксидный катод, 1949. [6] T. Moore, H. Allison, J. Struthers, J. Chem. Phys., **18** (1950); L. Aldrich, J. Appl. Phys., **22**, 1168 (1951). [7] J. Lennard-Jones, R. Devonshire, Proc. Roy. Soc., A, **156**, 6 (1936); Я. Френкель, Усп. физ. наук, **20**, 117 (1938); В. Бонч-Бруевич, там же, **40**, 378 (1950); H. Massey, E. Burhop, Electronic and Ionic Impact Phenomena, 1952, p. 609.