

А.В. Феденев, В.С. Скакун, В.Ф. Тарасенко

ТРЕТИЙ КОНТИНУУМ В АРГОНЕ И КРИПТОНЕ ПРИ НАКАЧКЕ ПУЧКОМ ЭЛЕКТРОНОВ И РАЗРЯДОМ, ИНИЦИИРУЕМЫМ ПУЧКОМ ЭЛЕКТРОНОВ*Институт сильноточной электроники СО РАН, г. Томск*

Поступила в редакцию 2.09.99 г.

Проведены эксперименты по накачке инертных газов Ar и Kr и их смесей с Ne при различных давлениях импульсным пучком электронов и разрядом, инициируемым пучком электронов. Полученные результаты позволяют сделать заключение о роли метастабильных атомов и димерных молекул в формировании состояний, излучающих молекулярно-ионный континуум в послесвечении.

1. Введение

Начиная с 50-х годов спектральные характеристики плазмы инертных газов подробно исследовались при различных способах возбуждения, главным образом благодаря наличию интенсивных полос спонтанного излучения в ВУФ-УФ диапазоне [1, 2]. После получения лазерной генерации на связанно-свободных переходах возбужденных молекул Ar_2^* (126 нм), Kr_2^* (146 нм), Xe_2^* (178 нм) в 70-х годах [2] широкополосное излучение димеров (или «вторые континуумы инертных газов») продолжали изучать как экспериментально, так и теоретически. Параллельно исследователями отмечалось наличие в ВУФ-УФ спектре инертных газов существенно более слабого по интенсивности, но гораздо более широкого по спектральному диапазону излучения, получившего название «третий континуум», природа которого оставалась неопределенной. Автор [3] предположил, что это излучение принадлежит переходам дважды ионизованных молекулярных возбужденных систем типа Rg_2^{++} , излучательно распадающихся на $Rg^+ + Rg^+$. Подробный анализ теоретических и экспериментальных работ по исследованиям спектральных и временных характеристик третьего континуума инертных газов при различных способах накачки и по проблеме идентификации природы этого излучения был проведен в [1] и в более поздних работах [4–9]. В обзоре [1] рассмотрен предложенный различными авторами ряд переходов молекул и молекулярных ионов инертных газов, могущих излучать третий континуум. На основе подробного анализа наиболее вероятными кандидатами были названы переходы в молекулярных ионах из состояний Rg_2^{+*} (асимптотически соответствующих основному состоянию иона Rg^+ и возбужденному состоянию атома Rg^* ($^3P_{1,2}$)) в состояния Rg_2^+ (асимптотически соответствующие основным состояниям иона Rg^+ и атома Rg). Примеры указанных состояний, по мнению авторов, также могут давать вклад в излучение. Построенная кинетическая модель образования и распада Rg_2^{+*} была затем продолжена в работах [8, 9].

Одной из причин неоднозначности ответа на вопрос о природе широкополосного излучения в инертных газах является большое разнообразие экспериментальных условий, в которых проводились исследования. Кроме того, при интерпретации результатов многие авторы утверждали, что во всех случаях наблюдаются переходы из состояний молекул либо Rg_2^{+*} , либо Rg_2^{++} , тогда как анализ имеющихся

экспериментальных данных показывает, что количество пиков и их положение в спектре сильно зависят от давления газа, способа и мощности накачки.

Проведенное в [6] подробное исследование спектральных и временных характеристик широкополосного излучения плазмы инертных газов в широком диапазоне давлений (0,1–30 атм) при возбуждении импульсным источником рентгеновского излучения позволило однозначно зафиксировать положение локальных максимумов, их динамику во времени и изменение в зависимости от давления газа. Авторы [6] утверждают, что широкополосное излучение, так называемый третий континуум, является сложной суперпозицией множества отдельных полос, принадлежащих переходам как двухатомных, так и более сложных молекулярно-ионных комплексов. Высказанные авторами [1, 3] предположения о влиянии более сложных ионно-молекулярных комплексов, излучающих в длинноволновом крыле широкополосного излучения, не были учтены при построении моделей. Учет сложных комплексов при моделировании молекулярно-ионного континуума (МИК), возбуждаемого рентгеновским излучением в инертных газах высокого давления, был сделан недавно в работе [7].

Данная работа является продолжением экспериментов [8, 9], проведенных с целью выяснения влияния электрического поля на временные и спектральные характеристики широкополосного излучения инертных газов. Выполнены эксперименты по накачке инертных газов Ar и Kr и их смесей с Ne при различных давлениях импульсным пучком электронов и разрядом, инициируемым пучком электронов. Полученные результаты позволяют сделать вывод, что метастабильные атомы играют существенную роль в формировании состояний, излучающих молекулярно-ионный континуум.

1. Экспериментальная установка и методики

Возбуждение рабочих газов осуществлялось пучком электронов и разрядом, инициируемым пучком. Ускоритель электронов [1] обеспечивал плотность тока пучка за фольгой 3–4 А/см² при средней энергии электронов 150–170 эВ, длительности на полувысоте 50 нс, поперечном сечении выходного фольгированного окна 42×2 см. Разряд появлялся между металлической сеткой, защищающей фольгу, и расположенным на противоположной стороне камеры на расстоянии 4 см электродом. Разрядная емкость $C = 100$ нФ заряжалась до напряжения 15 кВ. Осциллограм-

мы тока разряда и тока диода ускорителя электронов регистрировались на осциллографе С8-14 при помощи малоиндуктивных низкоомных токовых шунтов. Интенсивность и временное поведение спонтанного излучения на выделенных с помощью монохроматора МДР-12 участках спектра регистрировалось ФЭУ-100 на С8-14. Выходное окно разрядной камеры закрывалось кварцевой пластиной рабочим диаметром 3 см. Ширина щелей монохроматора составляла 150–250 мкм (0,36 – 0,6 нм) в зависимости от интенсивности оптического сигнала. Выбор участков спектра широкополосного излучения, свободных от интенсивных линий и полос примесей (N_2 , ОН и других), осуществлялся на основе анализа спектрограмм, снятых на ИСП-30 в области 200–400 нм, а также по данным [8–10]. Интенсивность излучения приводится в относительных единицах без учета спектральной чувствительности регистрирующей аппаратуры.

2. Результаты экспериментов и предварительное обсуждение

2.1. Широкополосное излучение в аргоне

При накачке пучком электронов либо электрическим разрядом, инициируемым электронным пучком, независимо от условий эксперимента по напряжению на разрядном промежутке и давлению в рабочей камере осциллограммы оптического сигнала имели два максимума во времени. Первый достигался через 30 нс после начала импульса тока пучка и соответствовал времени достижения максимального энерговклада от пучка электронов. Амплитуда первого возрастала при увеличении давления газа и практически не изменялась при разрядном напряжении. Величина второго максимума и соотношение амплитуд максимумов, напротив, существенно зависели от наличия электрического поля (осциллограммы на рис. 1). При этом наибольшая относительная (по отношению к основному максимуму) величина сигнала в послесвечении наблюдалась на $\lambda = 190$ и 263,6 нм. Отметим, что

наличие двух максимумов в импульсе широкополосного излучения аргона отмечалось при накачке импульсным разрядом [10] и пучком электронов [1, 11].

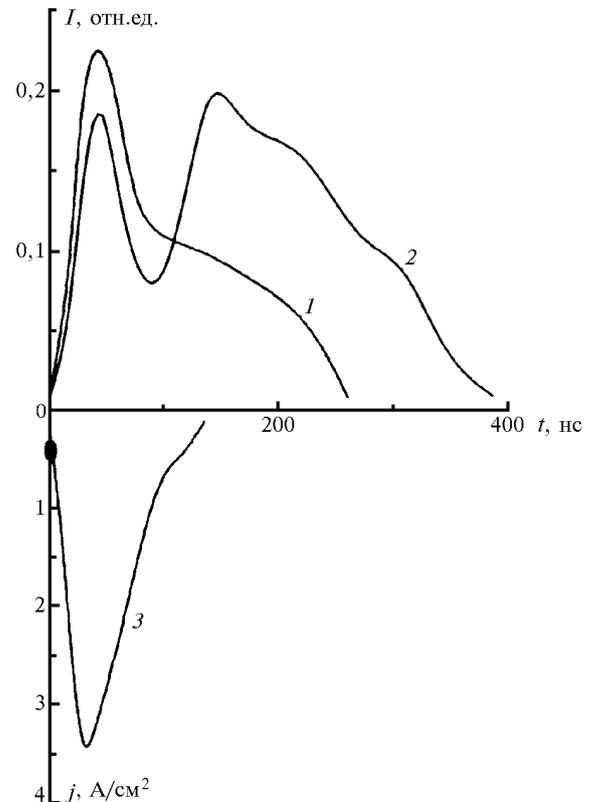


Рис. 1. Осциллограммы спонтанного излучения (1, 2) на $\lambda = 190$ нм в аргоне при давлении 0,25 атм и тока пучка электронов (3). Напряжение на промежутке 0 кВ – 1 и 3 кВ – 2

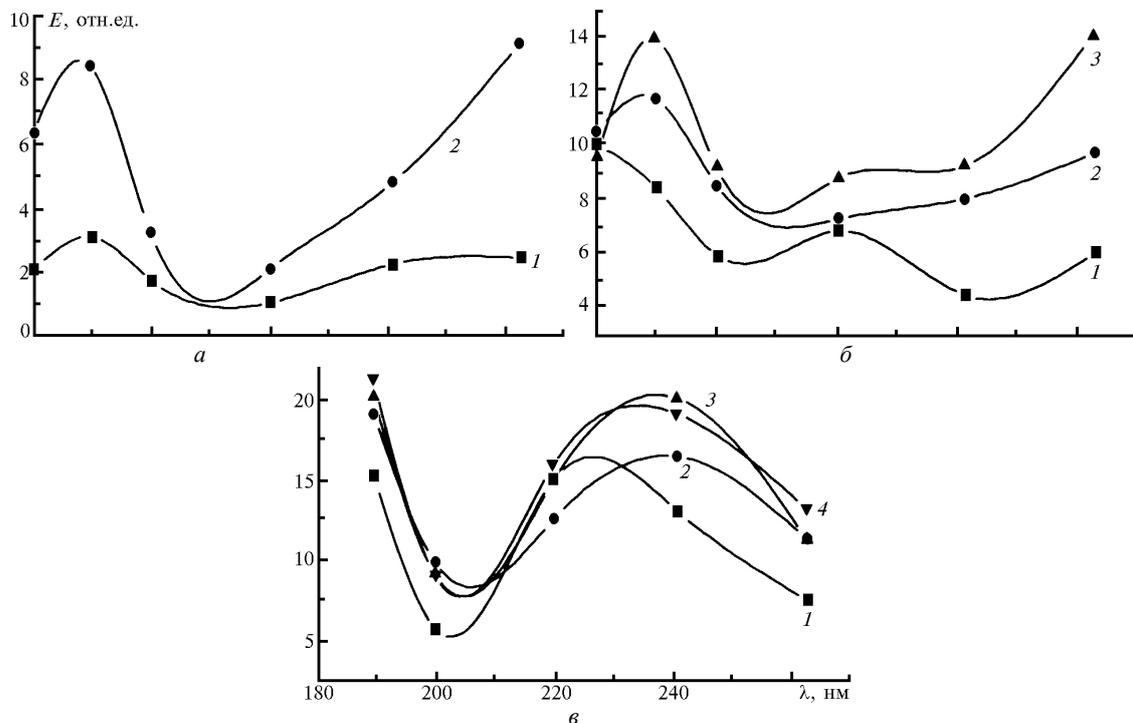


Рис. 2. Зависимости энергии спонтанного излучения в послесвечении на отдельных полосах молекулярно-ионного континуума в аргоне при давлениях 0,25 (а), 0,5 (б), 1 атм (в) и напряжениях на разрядном промежутке: 1, 2, 3, 4 – 0; 3; 5; 7,5 кВ

Исходя из предварительного анализа, импульс излучения можно разделить по времени на два периода – во время действия пучка электронов (первые 100 нс) и в послесвечении. На рис. 2 представлены зависимости энергии спонтанного излучения в послесвечении на отдельных полосах третьего континуума в аргоне при разных давлениях и напряжениях на разрядном промежутке. При давлении аргона 1 атм увеличение энергии оптического сигнала в послесвечении с возрастанием разрядного напряжения происходит практически на всех участках регистрируемого спектра, кроме $\lambda = 220$ нм. Наибольшее изменение отмечено на полосах с $\lambda = 200$ и 263 нм, где энергия излучения в послесвечении увеличилась на 70–80 % при $U = 7,5$ кВ по отношению к накачке только пучком электронов. Переход

к меньшим давлениям позволяет выделить две области в спектре третьего континуума аргона, в которых регистрируется существенное увеличение энергии послесвечения, – в районе $\lambda = 180$ –190 и 263 нм. При всех разрядных напряжениях и давлениях газа не отмечено практически никаких изменений энергии послесвечения в области $\lambda = 220$ нм. Некоторое увеличение при давлении 0,25 атм в этой области связано, очевидно, с влиянием полосы на $\lambda = 263$ нм.

Добавление неона к аргону при накачке пучком электронов приводило к подавлению широкополосного излучения аргона [8]. При этом отмечалось, что полоса в области 180–190 нм наименее восприимчива к влиянию неона. Накачка несамостоятельным разрядом смесей аргона с неоном приводит к подобным результатам.

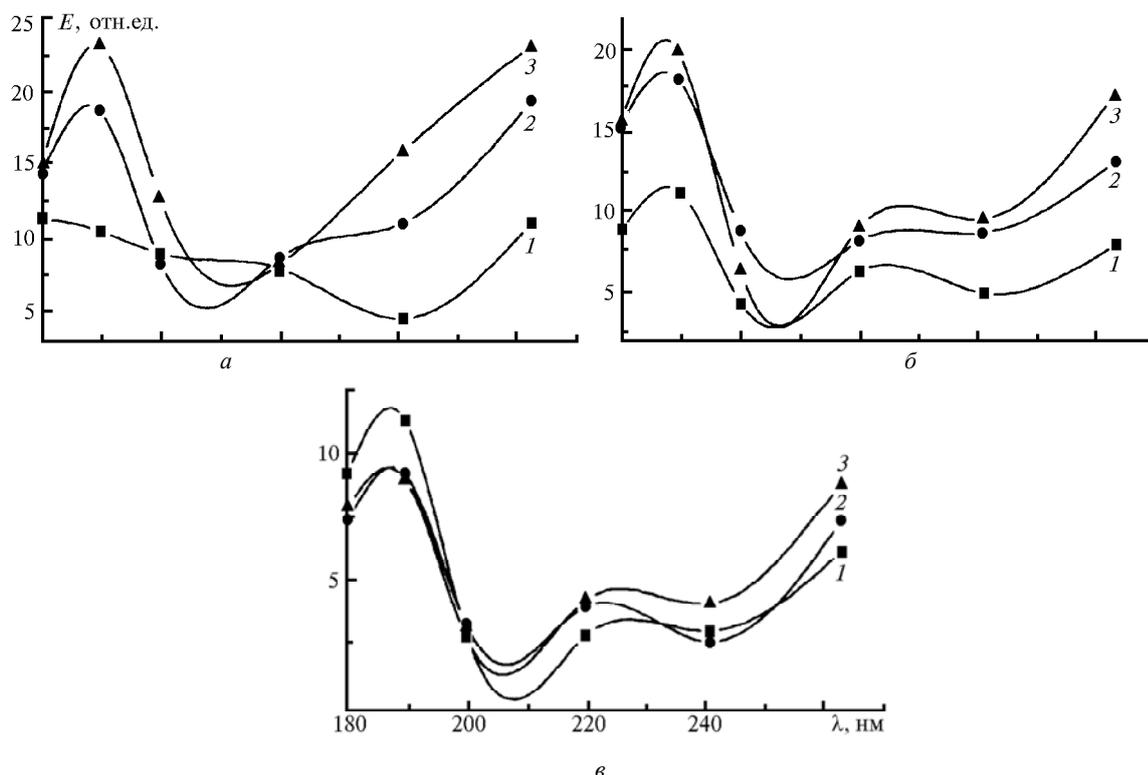


Рис. 3. Зависимости энергии спонтанного излучения в послесвечении на отдельных полосах молекулярно-ионного континуума в аргоне при давлении 0,5 атм и добавлении неона 30 торр (а), 150 торр (б), 0,5 атм (в) и напряжениях на разрядном промежутке: 1, 2, 3, 4 – 0; 3; 5; 7,5 кВ

На рис. 3 приведены аналогичные рис. 2 зависимости для смесей аргона (0,5 атм) с неоном (30, 150 торр и 0,5 атм соответственно). При малых добавках неона при отсутствии разрядного напряжения наблюдается небольшой рост энергии в послесвечении в области спектра 220–260 нм. Увеличение содержания неона приводит к подавлению послесвечения для всей регистрируемой области третьего континуума аргона, при этом излучение в областях 190 и 260 нм остается на значительном уровне даже при соотношении аргон – неон один к одному. Приложение разрядного напряжения в случае содержания неона в смеси до 150 торр приводит к относительно большему, чем для случая чистого аргона, увеличению энергии послесвечения в области $\lambda = 190$ и 260 нм. Однако при равном содержании неона и аргона наблюдается некоторый спад энергии в области $\lambda = 190$ нм и замедляется рост энергии в послесвечении в области 260 нм (рис. 3,в). Средняя часть спектра широкополосного излучения аргона

(200–240 нм) практически полностью подавляется при больших концентрациях неона в смеси, и приложение напряжения к разрядному промежутку не приводит в этом случае к изменению энергии в послесвечении.

2.2. Широкополосное излучение в криптоне

Аналогичные свойства были обнаружены для широкополосного континуума криптона. В условиях эксперимента осциллограмма спонтанного излучения криптона в области 200–320 нм имела основной пик, соответствующий импульсу возбуждения пучком электронов, и послесвечение. Наложение электрического поля приводило к изменению интенсивности и длительности послесвечения, практически не влияя на основной импульс. Результаты анализа послесвечения широкополосного излучения криптона при различных давлениях и напряжениях на разрядном промежутке представлены на рис. 4.

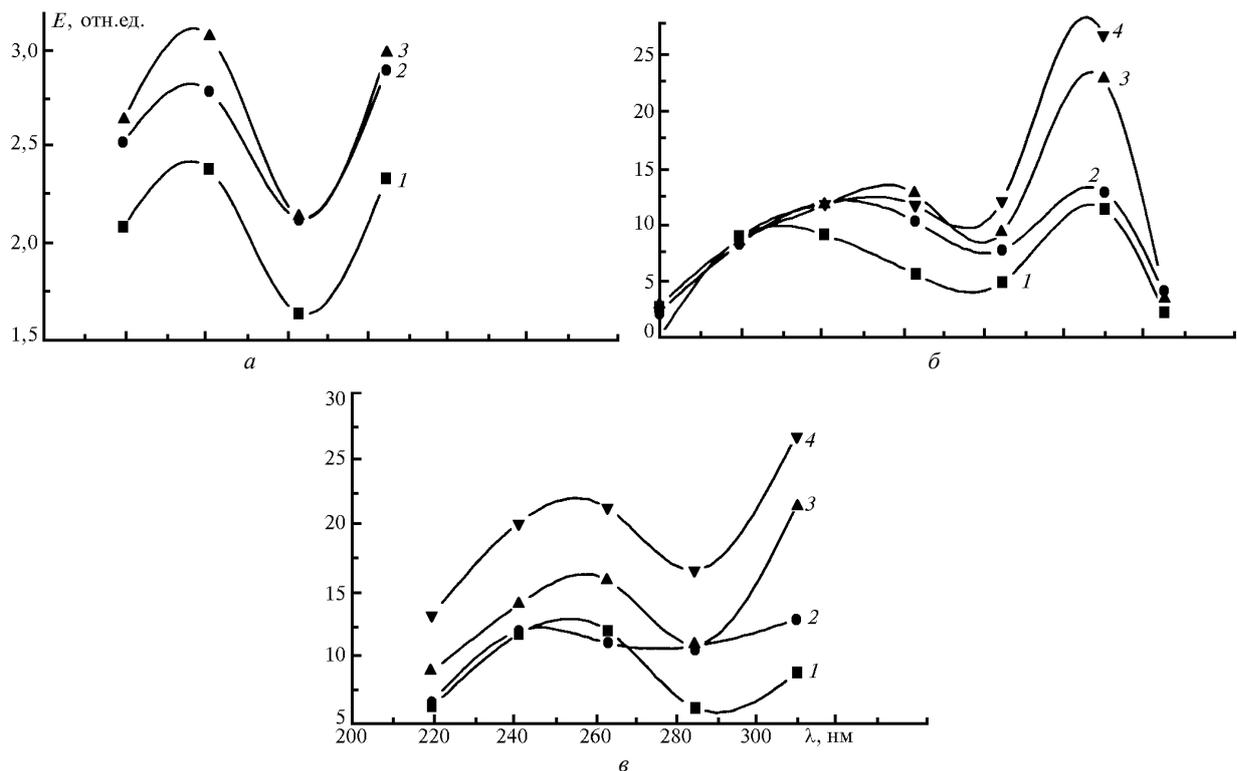


Рис. 4. Зависимости энергии спонтанного излучения в послесвечении на отдельных полосах молекулярно-ионного континуума в криптона при давлениях 0,25 атм (а), 0,5 атм (б), 1 атм (в) и напряжениях на разрядном промежутке: 1, 2, 3, 4 – 0; 3; 5; 7,5 кВ

Следует отметить, что наиболее интенсивный пик в области 310 нм (рис. 4,б) соответствует послесвечению молекул OH и OH^+ [11] и сильно искажает картину поведения континуума криптона в соседних областях спектра. Для криптона, по сравнению с аргоном, нет явно выраженных участков спектра широкополосного излучения, послесвечение которых проявляло бы устойчивые с увеличением давления газа изменения интенсивности при наложении поля. Возможно, это связано с большей тормозной способностью криптона и соответственно с изменяющейся в зависимости от давления однородностью предыонизации пучком электронов, а также с более сильным влиянием в спектре излучения трехатомных молекулярных ионов. В криптона уже при давлении 1 атм соотношение между двухатомными и трехатомными молекулярными ионами составляет порядка 10 к 90, тогда как в случае аргона это соотношение при давлении 2 атм обратное: 90 к 10 [12]. При давлениях криптона 0,25; 0,5 и 1 атм наибольшее изменение интенсивности послесвечения МИК при наложении электрического поля отмечается в областях 220–260 (максимум 235), 240–280 (максимум 260) и 220–300 нм (максимум 260 нм). Таким образом, при уменьшении давления область наибольших изменений в послесвечении перемещается в коротковолновую часть спектра.

3. Обсуждение и выводы

Полученные экспериментальные результаты, с учетом результатов предыдущих работ [8, 9], подтверждают сделанное в [7] заключение о том, что так называемый «третий континуум» является сложной суперпозицией многих полос, принадлежащих как двухатомным ионам, так и более сложным молекулярно-ионным комплексам, и более

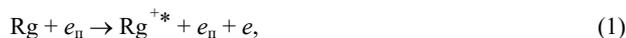
правильно будет использовать название «молекулярно-ионный континуум». Появление, исчезновение, ширина и интенсивность этих полос могут меняться в зависимости от условий возбуждения, давления и наличия примесей.

Поскольку при наложении электрического поля первый максимум практически не изменяется, то основное внимание будет уделено излучению, наблюдаемому после окончания тока пучка. В работе [11] при возбуждении инертных газов 5-наносекундным пучком электронов также отмечалось наличие в оптическом сигнале узкого интенсивного пика, проявляющегося во всем исследуемом спектральном диапазоне, и длительного послесвечения, регистрируемого только в области третьего континуума. На основании этого авторами [11] было сделано предположение, что короткий интенсивный пик соответствует излучению на переходах атомарных ионов. Энергия этого излучения недостаточна, чтобы уверенно регистрироваться на фотопленке. Третий континуум же излучается в основном в послесвечении. В нашем случае это объяснение временного поведения не проходит, так как в областях, где на спектрограммах отсутствует линейчатое излучение, а регистрируется только широкополосный спектр, энергия в первом пике зачастую превышает или равна энергии в послесвечении. Более того, в области 180–190 нм при давлениях аргона меньше 0,5 атм первый пик (первые 100 нс, соответствующие полной длительности пучка электронов) практически не регистрировался в условиях эксперимента.

Рассмотрим возможные причины усиления послесвечения МИК инертных газов в послесвечении при накачке разрядом, инициированным пучком электронов. Приложение слабого электрического поля в условиях нашего эксперимента приводило к сравнительно небольшому увеличению температуры электронов плазмы

и к существенным изменениям интенсивности и длительности послесвечения МИК на отдельных участках спектра. Закономерен вывод о том, что послесвечение не может быть обусловлено двукратно заряженными молекулярными ионами, а принадлежит однократно заряженным молекулярным ионам типа Rg_2^{+*} . Поэтому в дальнейших рассуждениях будем использовать модель [1]. Согласно этой модели (обозначения см. в [1]) заселение состояний $Rg_2^{+*}(1)$, излучающих в области МИК, может происходить по двум каналам ($Rg_2^{+*}(1)$ – состояние, асимптотически соответствующее основному состоянию иона и возбужденному состоянию атома, а $Rg_2^{+*}(2)$ – асимптотически соответствующее основному состоянию атома и возбужденному состоянию иона Rg^{+*}):

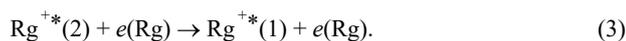
1. Первый канал – ионизация с возбуждением:



где e_n – электроны пучка накачки с последующим переходом в $Rg_2^{+*}(2)$:



и перемешиванием электронами или газом в состояние $Rg_2^{+*}(1)$:



Второй канал начинается с конверсии иона и возбужденного атома:



В работе [1] была сделана оценка относительной эффективности этих каналов во время действия пучка электронов и показано, что при высоких мощностях накачки (частота ионизации 10^4 c^{-1}) основной вклад в заселение $Rg^{+*}(1)$ будет давать первый канал. В послесвечении возможно преобладание заселения по второму каналу, поскольку при больших мощностях накачки после импульса возбуждения в плазме довольно длительное время сохраняется высокая концентрация метастабильных атомов и электронов. При взаимодействии с электронами плазмы будут происходить как реакции ионизации метастабильей



так и наработка новых метастабильей



Эти реакции уравниваются обратными и в случае рекомбинирующей плазмы обратные потоки преобладают. Приложение внешнего электрического поля к плазме приводит к увеличению температуры электронов, ионизационной неравновесности в плазме и преобладанию прямых реакций (5), (6). Константа скорости реакции (5) имеет экспоненциальную зависимость от температуры электронов $k_5 = 4 \cdot 10^{-5} \cdot T_e^{-3} \exp(-4,2/T_e)$ (для аргона) [1]. Увеличение температуры электронов приводит к возрастанию скорости ионизации метастабильей, следовательно, увеличивается скорость наработки излучающих молекулярных ионов по второму каналу [реакция (4)] и возрастает интенсивность

широкополосного излучения в послесвечении. При повышении давления газа увеличивается скорость конверсии метастабильей, и возрастание интенсивности в послесвечении должно наблюдаться при больших напряжениях электрического поля, что и проявляется в эксперименте.

Необходимо отметить также возможное влияние реакции ионизации эксимерных молекул:



константа которой $k_7 = 4 \cdot 10^{-5} \cdot T_e^{-3} \exp(-3,7/T_e)$ (для аргона) [1] также сильно зависит от температуры электронов. Эта реакция должна вносить вклад при высоких давлениях газа. В криптоне с приложением электрического поля при давлении 0,25 атм увеличение энергии послесвечения МИК происходит в области 200 – 260 нм с максимумом около 235 нм, а при увеличении давления спектральное положение полосы наибольших изменений смещается в более длинноволновую область, что указывает на смену излучающих молекул с димерных ионов на более сложные ионно-молекулярные комплексы.

Атомы Ne при добавлении его в аргон оказывают слабое влияние на температуру электронов плазмы и соответственно на скорость реакции (4), однако они разрушают излучающее состояние Ar_2^{+*} (см. реакции в [8]). С другой стороны, при больших концентрациях неона в реакции Пеннинга будут эффективно нарабатываться ионы аргона, которые далее участвуют в формировании состояний, излучающих МИК. Совокупность этих процессов приводит в итоге к тушению всего широкополосного излучения аргона, но при этом интенсивность излучения в областях около 190 и 260 нм во втором по времени максимуму уменьшается медленнее. Добавление 3% воздуха к 0,5 атм аргона привело к уменьшению интенсивности и энергии сигнала в послесвечении более чем в два раза. Это уменьшение связано, по нашему мнению, с эффективной передачей энергии возбуждения от метастабильей аргона на молекулы азота.

Таким образом, второй максимум во временном ходе излучения МИК инертных газов можно объяснить накоплением энергии накачки в метастабильях и, при высоких давлениях – в димерах, с дальнейшей ионизацией их электронами плазмы и заселением излучающих состояний молекулярных ионов в реакции конверсии иона и возбужденного атома [реакция (4)] или возбуждением электронами плазмы молекулярного иона соответственно. Наложение электрического поля на плазменный промежуток приводит к увеличению температуры электронов, повышению скорости ионизации метастабильей и димеров и в конечном итоге к увеличению скорости наработки излучающих состояний в реакции (4). Т.е. полосы излучения в аргоне с максимумами на длинах волн 235 и 260 нм, интенсивность которых существенно увеличивается при наложении электрического поля, однозначно относятся к однократно ионизованным молекулярным ионам.

Данная работа выполнена при поддержке гранта INTAS № 96-351.

1. Бойченко А.М., Тарасенко В.Ф., Фомин Е.А., Яковленко С.И. // Квантовая электроника. 1993. Т. 20. № 1. С. 7–30.
2. Эксимерные лазеры / Под ред. Ч. Роудза. М.: Мир, 1982. 245 с.
3. Langhoff H. // Opt. Comm. 1988. V. 68. № 1. P. 31–34.
4. Langhoff H. // Phys. B. 1994. V. 27. P. 709–714.
5. Amirov A.Kh., Korshunov O.V., Chinnov J. // Phys. B. 1994. V. 27. P. 1753–1771.

6. Robert E., Khacef A., Cachoncinlle C., Pouvesle J.M. // Opt. Comm. 1995. V. 117. P. 179–188.
7. Robert E., Khacef A., Cachoncinlle C., Pouvesle J.M. // IEEE J. Quantum Electron. 1997. V. 33. P. 1–10.
8. Бойченко А.М., Тарасенко В.Ф., Феденев А.В., Яковленко С.И. // Квантовая электроника. 1997. Т. 24. № 8. С. 697–703.
9. Бойченко А.М., Тарасенко В.Ф., Феденев А.В., Яковленко С.И. // Оптика и спектроскопия 1999. Т. 85. № 6. С. 925–934.
10. Cachoncinlle C., Pouvesle J.M., Davanloo F., Coogan J.J., Collins C.B. // Opt. Comm. 1990. V. 79. P. 41–43.
11. Амиров А.Х., Кориунов О.В., Чиннов В.Ф. // Спектры излучения и кинетика слабоионизованных инертных газов. М., 1991. 51 с. (Препринт / ИВТАН, № 1-319).
12. Шампань Л.Ф. Нестационарное поглощение в УФ-области спектра // Газовые лазеры: Пер. с англ. / Под ред. И. МакДаниеля и У. Нигэна. М.: Мир, 1986. С. 552.

A.V. Fedenev, V.S. Skakun, V.F. Tarasenko. **Third Continuum in Argon and Krypton Under Pumping by Electron Beam and Electron Beam Initiated Discharge.**

The experiments on pumping the inert gases Ar and Kr and their mixtures with Ne at various pressures by an impulse electron beam and discharge, initiated by an electron beam were carried out. The obtained outcomes allow one to make a conclusion about influence of metastable atoms and dimer molecules on formation of states, emitting a molecular-ionic continuum in afterglow.