

Л.Л. Лосев, В.И. Сосков

**НЕЛИНЕЙНАЯ ФОТОИОНИЗАЦИЯ ВОЗДУХА
В СПЕКТРАЛЬНОМ ИНТЕРВАЛЕ (355–200) НМ**

С помощью УФ-лазера, дискретно перестраиваемого в диапазоне 355–200 нм, проведено исследование нелинейной фотоионизации воздуха. Установлено, что в области длин волн 355–200 нм происходит двухступенчатая ионизация азота и кислорода, а при $\lambda < 205$ нм — двухфотонная ионизация кислорода. Показано, что в случае двухступенчатого процесса сечение фотоионизации уменьшается при увеличении давления газа.

Введение

Необходимость создания определенной концентрации свободных носителей в газовой среде, в частности, в воздухе, а также возможность ее плавного изменения в широких пределах возникает в ряде практических задач. Обычно для этих целей используется излучение газового разряда, рентгеновские источники или пучки заряженных частиц. Каждый из этих источников обладает рядом характерных свойств, которые и определяют область его применения. Как было показано в [1], нелинейная ионизация лазерным излучением УФ-диапазона позволяет создавать в газовых средах частично ионизированные протяженные объемы. В [1] в качестве источника УФ-излучения для ионизации воздуха использовалась четвертая гармоника Nd:YAG-лазера ($\lambda = 266$ нм), и было установлено, что при изменении интенсивности лазерного излучения от 10^8 до 10^{10} Вт/см² концентрация образующихся фотоэлектронов меняется от 10^8 до 10^{13} см⁻³ по степенному закону со степенью нелинейности ~ 2 .

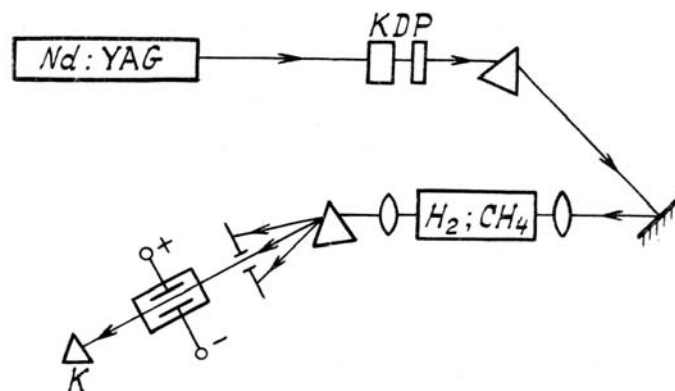


Рис. 1. Схема экспериментальной установки

С целью возможного повышения эффективности нелинейной ионизации — уменьшения значения интенсивности лазерного излучения, необходимой для создания требуемой концентрации ионов, в данной статье проведено исследование нелинейной ионизации воздуха в спектральном диапазоне (355–200) нм.

Экспериментальная установка

Для исследования ионизации газов использовалась установка, схема которой представлена на рис. 1. Излучение Nd:YAG-лазера, работающего в режиме пассивной синхронизации мод с выделением одиночного импульса, усиливалось и преобразовывалось при помощи двух кристаллов KDP в четвертую или третью гармоники с длинами волн $\lambda_{4\omega} = 266$ нм, $\lambda_{3\omega} = 355$ нм. Длительность импульса составляла ~ 35 пс, энергия — до 10 мДж.

Излучение фокусировалось линзой с фокусным расстоянием 1 м в кювету, заполненную водородом или метаном до давления 10 атм. В кювете излучение преобразовывалось при ВКР в стоксовы и антистоксовы компоненты, которые затем коллимировались линзой и разделялись дисперсионной

призмой. Нужная компонента излучения направлялась в кювету с исследуемым газом. Таким образом, был создан источник излучения, спектр которого показан на рис. 2. Для того чтобы получить более однородное распределение интенсивности, из светового пучка диаметром 15 мм с помощью диафрагмы диаметром 3,8 мм выделялась центральная область.

Для регистрации образовавшихся при ионизации исследуемого газа свободных носителей применялась ионизационная камера, устройство которой описано в [1]. Камера работала в режиме полного сбора зарядов. Энергия излучения измерялась на выходе ионизационной камеры.

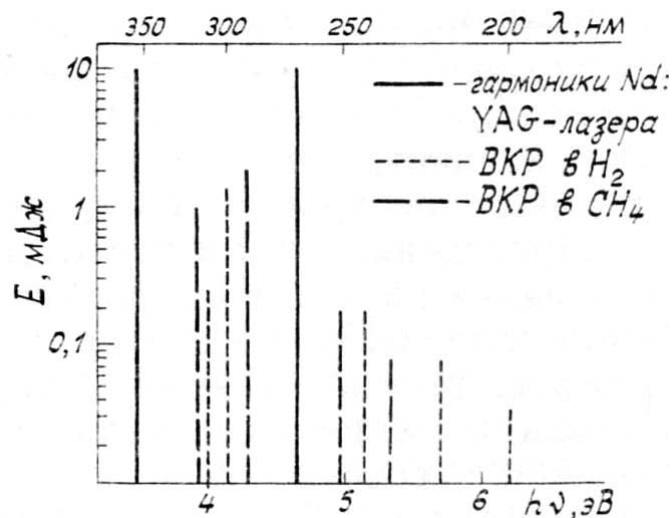


Рис. 2. Спектр лазерного источника

Известно, что длительность стоковых и антистоковых компонент сокращается из-за нестационарности ВКР. Исходя из существующих экспериментальных данных, она принималась равной 10 пс [2]. Следует также отметить, что варьирование энергии накачки в процессе проведения экспериментов может приводить к изменению длительности импульсов преобразованного излучения. В условиях нашего эксперимента это изменение составляло 50%.

Спектральные исследования нелинейной фотоионизации воздуха

Так как воздух является многокомпонентной смесью газов, отдельные компоненты которой имеют различные концентрации, сечения и потенциалы ионизации, то заранее указать, какая компонента вносит наибольший вклад при нелинейной ионизации, достаточно сложно. Точный ответ на этот вопрос могут дать лишь массспектрометрические исследования продуктов ионизации. Также можно получить информацию о том, какие компоненты определяют нелинейную ионизацию на определенных участках спектра при исследовании зависимости процесса ионизации воздуха от частоты и интенсивности лазерного излучения.

В общем случае, при нелинейной фотоионизации электроны в газе могут образовываться как путем прямой многофотонной ионизации молекул, так и при резонансном многоступенчатом процессе — с переходом молекулы на промежуточный энергетический уровень [3]. При этом выражение для концентрации образующихся фотоэлектронов n_e , при отсутствии насыщения, можно представить в виде:
$$n_e = \sum_j n_j^0 \sigma_j(\omega) I^{m_j} \tau,$$
 где n_j^0 — концентрация компоненты воздуха; $\sigma_j(\omega)$ — сечение фотоионизации для данной компоненты; I — интенсивность ионизирующего излучения; m_j — степень нелинейности процесса фотоионизации; τ — длительность импульса излучения. Суммирование производится по всем компонентам. Как видно из этого выражения, если m_j совпадает для нескольких компонент, то вклад каждой компоненты будет определяться произведением $n_j^0 \sigma_j(\omega)$. При этом если основной вклад в ионизацию вносит компонента с малой начальной концентрацией, следовательно с большим $\sigma(\omega)$, то, увеличивая интенсивность излучения, мы достигнем режима, когда произведение $\sigma_j(\omega) I^{m_j} \tau$ станет сравнимо с единицей, т.е. начнет проявляться насыщение. Это должно отразиться в уменьшении степени нелинейности m_j . Определяя концентрацию образующихся фотоэлектронов, при которой начинает проявляться насыщение, можно оценить концентрацию компоненты, которая вносит наибольший вклад в ионизацию. Как показано в [1], для $\lambda = 266$ нм в диапазоне интенсивностей $(10^7 - 10^{10})$ Вт/см² степень нелинейности не изменяется, оставаясь равной ~ 2 , а концентрация образующихся фотоэлектронов достигает величины $\sim 5 \times 10^{13}$ см⁻³. Следовательно, можно сделать вывод, что ионизируется такая компо-

нента воздуха, концентрация которой больше чем $(10^{14} - 10^{15}) \text{ см}^{-3}$. В воздухе в таких концентрациях присутствуют N_2 , O_2 , Ar и CO_2 [4].

Проведенные нами исследования показали, что при ионизации воздуха излучением в спектральном диапазоне от 299 (первая стоксова компонента в H_2) до 200 нм (третья аптистоксова компонента в H_2) (см. рис. 2) наблюдается квадратичная зависимость $m = 2,0 \pm 0,2$. При ионизации излучением с длиной волны $\lambda = 355$ нм (3-я гармоника Nd:YAG-лазера) степень нелинейности становится равной $3,0 \pm 0,3$. Так как N_2 , O_2 , Ar и CO_2 имеют потенциалы ионизации, равные 15,58; 12,08; 15,8 и 13,77 эВ соответственно, то за исключением излучения с $\lambda = 200$ нм, для которого возможен процесс прямой двухфотонной ионизации O_2 , на остальных длинах волн происходит, по-видимому, двухступенчатый процесс ионизации, протекающий по следующей схеме: 1) $M + 2h\nu \rightarrow M^*$; 2) $M^* + h\nu \rightarrow M^+ + e$. Насыщение однофотонного перехода на втором этапе может привести к наблюдаемой в эксперименте нелинейности процесса ~ 2 .

Атом Ar имеет хорошо известную систему уровней [5], из которой следует, что в нем в условиях нашего эксперимента этот процесс невозможен. Что касается CO_2 , то при охлаждении воздуха до температур $\sim 100^\circ\text{K}$ концентрация CO_2 в воздухе может быть уменьшена до $\sim 10^{10} \text{ см}^{-3}$. Однако проведенный эксперимент показал, что предварительное вымораживание воздуха не влияет на выход фотоэлектронов. Следовательно, CO_2 также не играет существенной роли в нашем случае. Остаются газы — азот и кислород.

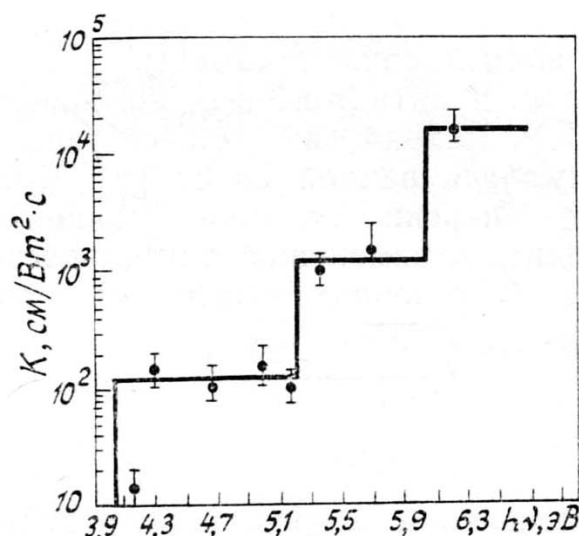


Рис. 3. Зависимость K от энергии кванта

На рис. 3 представлена полученная зависимость коэффициента K в выражении $n_e = KI^2\tau$ от длины волны. Коэффициент K равен сумме $\sum_j n_j^0 \sigma_j(\omega)$ по всем ионизирующимся компонентам. Как видно

из полученной зависимости, коэффициент K резко изменяется в областях энергий квантов ~ 6 ; 5,25 и 4 эВ. Объяснить такую зависимость можно, сопоставляя потенциалы ионизации азота и кислорода с энергиями квантов излучения. При этом видно, что изменение K в области 6 эВ хорошо коррелирует с переходом к прямой двухфотонной ионизации O_2 . Изменение в области 5,25 эВ совпадает с энергией кванта, при которой сумма трех квантов сравнивается с энергией ионизации N_2 . При этом начинается осуществляться два кванта. Это следует из структуры уровней молекулы азота [6]. Аналогично изменение K в области 4 эВ соответствует энергии кванта, которая в случае утроения сравнивается с потенциалом ионизации O_2 . В данном случае также возможна двухступенчатая ионизация (что видно из структуры уровней O_2) [6]. Причем для квантов с энергией меньше 4 эВ на первой ступени поглощаются три кванта, а для энергий больших 4 эВ — два, что и отражается в изменении степени нелинейности процесса. Исходя из этого можно сделать вывод, что при нелинейной ионизации воздуха в диапазоне длин волн 355–238 нм и для излучения с $\lambda < 205$ нм основной ионизирующейся компонентой является кислород, а в диапазоне 238–205 нм — азот. А так как спектры N_2 и O_2 непрерывны в УФ-диапазоне [6], то можно предположить, что данная закономерность сохранится для всех длин волн исследованного диапазона.

Исследование зависимости сечения нелинейной фотоионизации от давления газа

Как было показано в предыдущей статье [1], результаты которой подтверждаются в [7], при нелинейной ионизации воздуха излучением с $\lambda = 266$ нм для фиксированной интенсивности излучения концентрация образующихся свободных носителей остается примерно постоянной при изменении

давления воздуха в пределах ($10^2 - 10^3$) Торр. Как отмечалось в [1], такую зависимость нельзя объяснить процессами рекомбинации свободных носителей. Была дана интерпретация полученной зависимости на основе процессов тушения автоионизационных состояний при неупругих столкновениях. Однако результаты исследований, приведенные в данной статье, показали, что такой характер зависимости наблюдается для всех длин волн (за исключением $\lambda = 200$ нм), при которых нелинейная ионизация осуществляется путем каскадного двухступенчатого процесса. В случае прямой многофотонной ионизации кислорода (излучение с $\lambda = 200$ нм) зависимость концентрации фотоэлектронов от давления газа меняется и становится линейной. Аналогичная зависимость при $\lambda = 200$ нм была получена для Хе (потенциал ионизации 12,1 эВ), в котором также идет прямая двухфотонная ионизация. Линейная зависимость концентрации фотоэлектронов от давления Хе наблюдалась и в [8] при прямой двухфотонной ионизации ($\lambda = 193$ нм). Следовательно, можно предположить связь наблюдаемой в [1] зависимости с существованием промежуточного резонанса. Резонансный уровень может уширяться при столкновениях, что, в свою очередь, приводит к уменьшению сечения ионизации а при увеличении давления [3], в связи с чем рост концентрации электронов становится непропорциональным давлению. Экспериментально полученная зависимость σ от давления для O_2 при $\lambda = 266$ нм представлена на рис. 4. Там же приведены полученные значения σ для O_2 и Хе при $\lambda = 200$ нм, которые не зависят от давления.

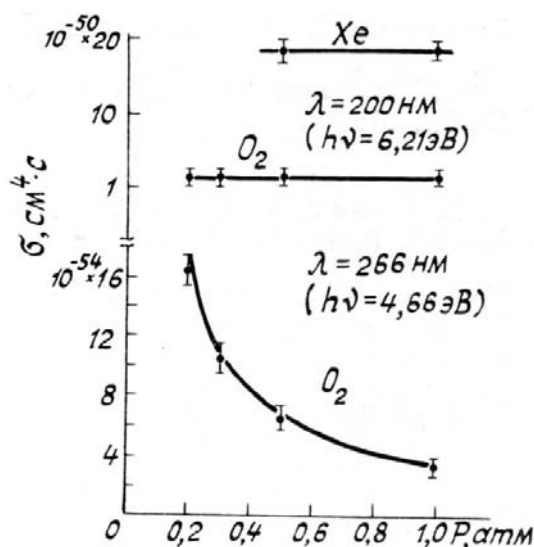


Рис. 4. Зависимость сечения нелинейной фотоионизации от давления газа

Заключение

Таким образом, нами получены следующие результаты:

1. Установлено, что при нелинейной ионизации воздуха для длин волн в диапазоне (299–200) нм наблюдается квадратичная, а для $\lambda = 355$ нм кубическая зависимость выхода фотоэлектронов от интенсивности лазерного излучения.

2. Получена зависимость коэффициента $K = n_e/I^2\tau$ от длины волны. На основе полученной зависимости установлено, что наибольший вклад в нелинейную ионизацию воздуха в исследованном спектральном диапазоне вносят N_2 и O_2 .

3. Измерена зависимость сечения нелинейной ионизации O_2 от давления при прямой двухфотонной ионизации ($\lambda = 200$ нм) и при двухступенчатом процессе ионизации ($\lambda = 266$ нм). Показано, что в случае существования промежуточного резонанса сечение многофотонной ионизации падает при увеличении давления газа.

1. Лосев Л. Л., Сосков В. И. // Квантовая электроника. 1989. V. 16. № 1. С. 73.
2. Carman R. L., Mask M. E., Shimizu F., Blombergen N. // Phys. Rev. Lett. 1969. V. 23. № 23. P. 1327.
3. Делоне И. Б., Федоров М. Ф. // Труды ФИАН. 1980. V. 115. P. 42.
4. Батлер С., Чармон Р. Введение в химию атмосферы. М.: Мир, 1977, 210 с.
5. Герцберг Г. Атомные спектры и строение атомов. М.: Изд-во иностр. лит., 1948. 750 с.
6. Герцберг Г. Спектры и строение двухатомных молекул. М.: Изд-во иностр. лит., 1949. 628 с.
7. Анищенко Ю. В. // Письма в ЖТФ. 1989. Т. 15. № 7. С. 64.
8. Cown A. W., Ecliger M. N., Eden J. G. // Phys. Rev. A. 1982. V. 26. № 6. P. 318.
9. Смирнов Б. М. Возбужденные атомы. М.: Энергоиздат, 1982. 232 с.

L. L. Losev, V. I. Soskov. **Nonlinear Photoionization of Air by Radiation in the Spectral Range 200 to 355 nm.**

Nonlinear photoionization of the air has been studied using an UV laser discretely tunable in the range from 200 to 355 nm. It was found that in this spectral range there occurs a two stage ionization of nitrogen and oxygen, and of only the oxygen at $\lambda < 205$ nm. It is also shown that in the case of a double stage process the efficiency of photoionization decreases at the pressure increase.