

## АКТИВНЫЕ СРЕДЫ

PACS 42.55.Lt; 42.60.Lh

## Анализ возможности генерации на третьем континууме в аргоне

А.М.Бойченко, С.И.Яковленко

Теоретически исследована возможность генерации на третьем континууме аргона. Эта возможность анализируется с точки зрения двух оставшихся к середине 90-х гг. гипотез о природе третьих континуумов. Вычислены коэффициенты усиления в условиях, когда генерация наиболее вероятна, а именно в диапазоне давлений 1–30 атм и удельных мощностей накачки  $10^{-3}$ – $10$  МВт/(см $^3$ ·атм). Показано, что в приведенных условиях коэффициент усиления отрицателен и, следовательно, генерация невозможна.

**Ключевые слова:** третий континуум, аргон, коэффициент усиления.

## Введение

Как известно, при возбуждении плотных инертных газов возникают молекулярные полосы излучения (континуумы) в области длин волн, превышающих соответствующую резонансным атомным линиям длину волн. Эти полосы принято нумеровать по мере удаления их длины волн от длины волны излучения резонансной линии. Так, континуум, начинающийся сразу за резонансной линией, называется первым континуумом, за ним следуют второй и третий [1].

Первый континуум соответствует излучению с высоковозбужденных колебательных уровней первых электронно-возбужденных состояний  ${}^1\!{}^3\Sigma_u^+$  молекул инертных газов  $R_2^*$  в основное расталкивателное состояние  ${}^1\Sigma_g^+$  (рисунок). Второй континуум соответствует этому же электронному переходу, но из низких колебательных состояний [2, 3]. На переходах, соответствующих вторым континуумам, работают известные эксимерные лазеры на Xe (174 нм), Kr (146 нм) и Ar (126 нм) [4–8].

Третий континуумы в инертных газах известны с середины 50-х гг. [9, 10]; гипотезы об их происхождении отражены в обзоре [11]. Анализ работ [11–37], посвященных третьим континуумам за последние 10 лет, проведен в [38]. К середине 90-х гг. остались всего две точки зрения на природу их происхождения.

Согласно работам [12, 13], третий континуумы определяются переходами двухзарядных молекулярных ионов из состояний  $R_2^{++}(R_3^{++})$  в состояния  $R^+ + R^+(R_2^+)$ . Как следует из [14], третий континуумы образованы переходами однозарядных молекулярных ионов из состояний  $R_2^{+*}$  (асимптотически соответствующих основному состоянию иона  $R^+$  и возбужденному состоянию атома  $R^*({}^1, {}^3P)$  в состояния  $R_2^+$  (они асимптотически соответствуют основным состояниям иона  $R^+$  и атома  $R$ ) (см. рисунок). Тримеры однократных ионов  $R_3^{+*}$  также могут давать вклад в излучение третьих континуумов [11].

Исследование природы третьих континуумов часто

связывалось с надеждой на получение генерации [11, 12, 17, 29–31]; эта надежда особенно возросла после запуска лазеров на переходах вторых континуумов. Лазеры на переходах третьих континуумов были бы привлекательны уже тем, что их активная среда состоит из инертного газа и не является агрессивной. Кроме того, производство оптических элементов (в основном зеркал) проще и надежнее для диапазонов длин волн 210–300 нм, соответствующих третьим континуумам, тогда как вторым континуумам соответствуют длины волн 126–174 нм. Пот-

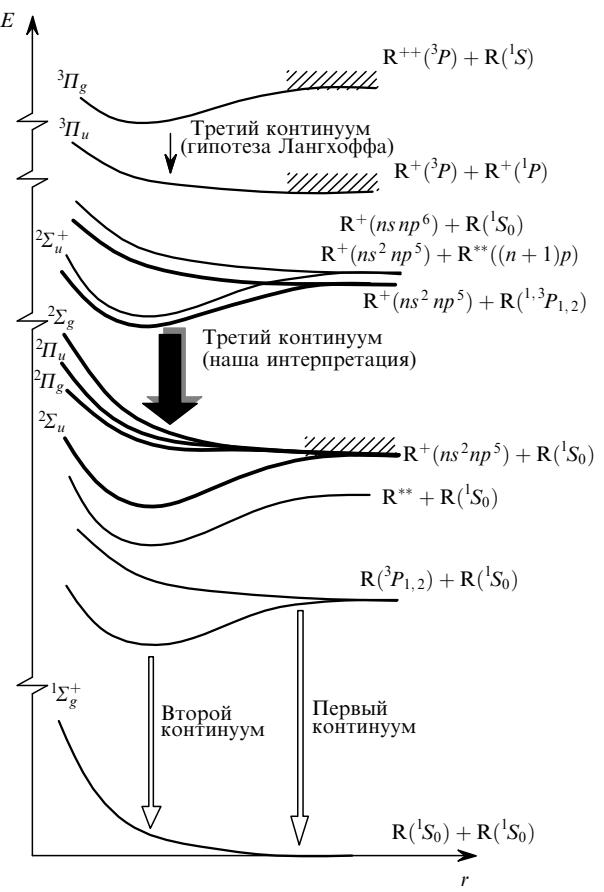


Схема термов молекул инертных газов с переходами, поясняющими природу первых, вторых и третьих континуумов.

Институт общей физики РАН, Россия, 117924 Москва, ул. Вавилова, 38

Поступила в редакцию 29 декабря 1999 г.

скольку ширина излучательных переходов третьих континуумов значительно больше ширины переходов вторых континуумов, а положения максимумов излучения зависят от давления среды, то имелась бы также возможность получения перестраиваемой генерации в диапазоне шириной 10–30 нм вблизи длины волны излучения.

Коэффициент усиления, равный  $0.08 \text{ см}^{-1}$ , был получен в эксперименте [20] при мощной протонной накачке ксенона. Теоретическое рассмотрение, проведенное в этой же работе, показало, что коэффициенты усиления во всей области давлений и мощностей накачек, соответствующих проведенным экспериментам, должны быть отрицательными, что говорит о невозможности генерации на третьем континууме в данных условиях. Последующие эксперименты подтвердили наличие отрицательного коэффициента усиления.

Третий континуумы в ксеноне и криптоне обладают важной особенностью, препятствующей генерации. Дело в том, что спектральные области поглощения одних из самых мощных поглотителей – ионов  $\text{Kr}_2^+$  и  $\text{Xe}_2^+$  – существенно перекрываются со спектральной областью излучения третьих континуумов для криптона и ксенона [39]. Этот факт, согласно имеющимся представлениям о природе излучающих состояний третьих континуумов, делает генерацию в криптоне и ксеноне невозможной, поскольку населенность и сечения поглощения основного состояния однократных молекулярных ионов всегда больше, чем населенности и сечения вынужденного излучения возбужденных молекулярных состояний однократных ионов и основного состояния двухкратных молекулярных ионов.

По сравнению с криптоном и ксеноном аргон оказывается на особом положении. Максимумы интенсивностей излучения третьих континуумов аргона лежат в диапазоне 200–240 нм при изменении давления от 1 до 17 атм. Граница поглощения молекулярных ионов  $\text{Ar}_2^+$  соответствует примерно 200 нм [39]. Именно этот факт мог бы стать решающим для получения генерации в аргоне. О генерации на третьем континууме аргона сообщалось в [40], однако с тех пор никому не удалось повторить этот результат, который, как позднее отмечали сами авторы, не был стабильным [41].

Чтобы разобраться в причинах нестабильности, позднее были проведены работы [41, 42]. В [42] коэффициент усиления измерялся в диапазоне 215–260 нм; он достигал максимумов примерно при  $\lambda = 230$  и 244 нм и приблизительно равнялся  $0.03 \text{ см}^{-1}$ . В работе [41] был обнаружен «резонаторный эффект», который состоял в том, что при установке в резонатор второго зеркала интенсивность излучения на  $\lambda = 220$  нм увеличивалась приблизительно в 10 раз, а на  $\lambda = 240$  нм – более чем в 10 раз по сравнению со случаем, когда было установлено только одно зеркало. Эксперименты проводились при давлении 3 атм. Напомним, тем не менее, что с 1994 г. [40] воспроизвести генерацию никому не удалось. Поскольку в обсуждаемых работах не приведены параметры электронного накачивающего пучка, то непосредственная расчетная проверка приведенных коэффициентов усиления затруднена.

В связи с вышеизложенным, наиболее перспективной активной средой с точки зрения получения генерации на третьем континууме является аргон. Теоретическому поиску условий, при которых возможна генерация, и посвящена настоящая работа. Поиск проводился на основе кинетического описания процессов, соответствующих

рассмотренным выше двум гипотезам о происхождении третьих континуумов.

## 1. О природе излучающих состояний третьего континуума

Приведенные во Введении две конкурирующие точки зрения на природу третьих континуумов будем называть гипотезами излучения на переходах однозарядных [14] и двухзарядных [12] ионов (см. рисунок).

Анализ показал, что особенности третьих континуумов объясняются гипотезой излучения однозарядных ионов. Выявлено несоответствие гипотезы излучения двухзарядных ионов [12, 13] как экспериментальным данным по третьим континуумам, так и теоретическому рассмотрению.

Дело в том, что эта гипотеза противоречит экспериментальным зависимостям энергии излучения третьих континуумов от давления, современным представлениям о константах скоростей ключевых плазмохимических реакций, проходящих в активной среде инертных газов, экспериментам по тушению третьих континуумов аргона, криптона и ксенона различными реагентами, экспериментам по длительности свечения третьих континуумов при мощной накачке среды, а также экспериментам по возбуждению кристаллических образцов инертных газов.

Итак, на основе данных из [11, 38] можно заключить, что третий континуумы в инертных газах в основном определяются излучением однозарядных ионов. Хотя излучение двухзарядных ионов и может давать вклад в излучение третьих континуумов, он мал и не оказывает заметного влияния при давлениях  $p \geq 1$  атм. Определяющий вклад излучения двухзарядных ионов возможен лишь при  $p < 0.3$  атм, когда абсолютная излученная энергия третьих континуумов уже мала по сравнению с излученной энергией при оптимальных давлениях (порядка атмосферы и более).

## 2. Кинетическая модель

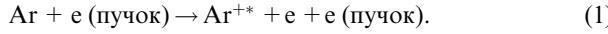
### 2.1. Кинетика заселения однократного молекулярного иона

При моделировании использовалась та же модель, что и в работе [25]. В [25] эта модель, построенная на основе гипотезы об излучении однократных ионов [14, 11], применялась для анализа тушения третьих континуумов аргона примесями различных инертных газов, накачиваемых электронным пучком.

В модель входят 13 реагентов:  $\text{Ar}$ ,  $\text{Ar}^*$ ,  $\text{Ar}^{**}$  – состояния атомов в основном и первых двух возбужденных состояниях (центры 4s- и 4p-уровней), соответствующие им молекулярные состояния  $\text{Ar}_2^*$  и  $\text{Ar}_2^{**}$ , ионы  $\text{Ar}^+$  (в основном состоянии),  $\text{Ar}^{+*}$  (в состоянии  $3s3p^6$ ),  $\text{Ar}_2^+$  – основное состояние молекулярного иона,  $\text{Ar}_2^{+*}(1)$  – состояния, асимптотически соответствующие состояниям  $\text{Ar}^{+*} + \text{Ar}^*(^{1,3}P)$ ,  $\text{Ar}_2^{+*}(2)$  – состояниям  $\text{Ar}^{+*} + \text{Ar}$  и  $\text{Ar}^+ + \text{Ar}^{**}$ , а также дважды ионизованные атомарные ( $\text{Ar}^{++}$ ) и молекулярные ( $\text{Ar}_2^{++}$ ) ионы и электроны; модель содержит около 80 реакций. Численно решались уравнения для зависимостей от времени концентраций реагентов, электронной и газовой температур. Вычисления проводились с помощью пакета программ ПЛАЗЕР [43].

Кратко отметим основные каналы заселения состо-

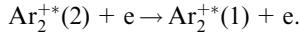
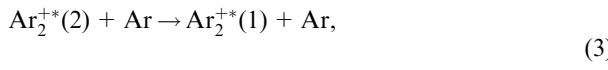
яний, излучающих в третий континуум [11, 38]. При слабой накачке среды заселение возбужденных состояний молекулярного однозарядного иона происходит за счет следующей цепочки реакций. Возбужденные атомарные ионы образуются при столкновении нейтральной частицы с быстрым электроном:



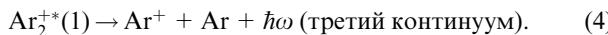
Далее возбужденный ион вступает в реакцию конверсии



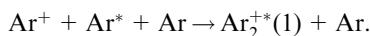
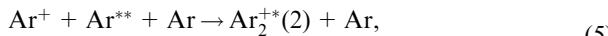
Эти состояния лежат примерно на 1–2 эВ выше тех, которые формируют излучение третьего континуума. Переход в рабочие состояния происходит за счет девозбуждения  $\text{Ar}_2^{+*}(2)$  ударом атома инертного газа или электронным ударом:



Третий континуум формируется излучательными переходами:



При сильной накачке среды (см., напр., [20], где возбуждение среды осуществлялось мощным протонным пучком) основной вклад в заселение возбужденных состояний однозарядных молекулярных ионов вносят реакции конверсии с участием возбужденных состояний атомов [11, 20]:



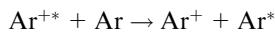
При этом, разумеется, по-прежнему заметную роль могут играть реакции (3) девозбуждения состояний  $\text{Ar}_2^{+*}(2)$  нейтральными частицами и электронами.

Сильная накачка отличается от слабой тем, что в активной среде степень ионизации  $\alpha \geq 0.1$ . Это соответствует удельным мощностям накачек  $w > 10 - 100 \text{ МВт}/(\text{см}^3 \cdot \text{атм})$  [11, 38]. Ниже будет рассматриваться модель накачки жестким ионизатором (электронные, ионные пучки, коротковолновое излучение и т. д.), которая характеризуется универсальной величиной – частотой ионизации  $v$  [43]. Так, например, при накачке электронным пучком

$$v \approx 2\sigma(E)j/e,$$

где  $\sigma(E)$  – сечение ионизации атомов инертного газа электронами с энергией  $E$ ;  $j$  – плотность тока электронов;  $e$  – заряд электрона.

По сравнению с моделью [25] внесены два изменения. Во-первых, введена реакция



со скоростью  $10^{-11} \text{ см}^3/\text{с}$  (см. более подробно [28]) и, во-вторых, изменена частота ионизации состояния  $\text{Ar}(^1S_0)$  с образованием состояния  $\text{Ar}^{+*}$ . В [25] принималось, что

$v(\text{Ar}^{+*}) = 0.17v$ . Детальный анализ сечений возбуждения  $\text{Ar}^{+*}$  проведен в [44]. Из него следует, что, согласно различным работам, при энергии электрона  $E = 1 \text{ кэВ}$  частота  $v(\text{Ar}^{+*})$  меняется от  $0.025v$  до  $0.25v$ , где для  $v$  при  $E = 1 \text{ кэВ}$  использовались данные работы [45]. По-видимому [44], следует ориентироваться на соотношение  $v(\text{Ar}^{+*}) = 0.05v$ . Данным соотношением мы будем пользоваться и для  $E > 1 \text{ кэВ}$ .

Остановимся теперь более подробно на сечении вынужденного излучения и сечениях поглощения излучения различными компонентами плазмы. Сечение вынужденного излучения на третьем континууме аргона можно достаточно хорошо оценить из соотношения

$$\sigma^{(3)} = \frac{\lambda^2}{4\Delta\omega} A,$$

где  $\lambda$  – характеристическая длина волны излучения;  $\Delta\omega$  – ширина полосы излучения;  $A$  – обратное время жизни состояния  $\text{Ar}_2^{+*}(1)$ . Обратные времена жизни состояний  $\text{Ar}_2^{+*}(1)$  и  $\text{Ar}_2^*$  примерно равны, следовательно, учитывая, что при  $p > 1 \text{ атм}$  ширина третьего континуума  $\Delta\lambda^{(3)}$  примерно в 6.5 раза больше ширины второго континуума  $\Delta\lambda^{(2)}$  [46], а также то, что для состояний  $\text{Ar}_2^*(^1\Sigma_u^+)$  сечения вынужденного излучения для второго континуума  $\sigma(^1\Sigma_u^+) = 1.2 \cdot 10^{-17} \text{ см}^2$ ,  $\sigma(^3\Sigma_u^+) = 9.8 \cdot 10^{-20} \text{ см}^2$  [47–49], получаем

$$\sigma^{(3)} = \left( \frac{\lambda^{(3)}}{\lambda^{(2)}} \right)^4 \frac{\Delta\lambda^{(2)}}{\Delta\lambda^{(3)}} \left[ \frac{1}{4} \sigma^{(2)}(^1\Sigma_u^+) + \frac{3}{4} \sigma^{(2)}(^3\Sigma_u^+) \right] = 3.0 \cdot 10^{-18} \text{ см}^2.$$

При получении данного выражения использовались соотношение  $\Delta\omega = 2\pi c \Delta\lambda / \lambda^2$  и тот факт, что в исследуемом диапазоне частот ионизации населенности молекулярных состояний  $\text{Ar}_2^{+*}(1)$  и  $\text{Ar}_2^*$ , коррелирующих с состоянием  $\text{Ar}^*(^3P_{1,2})$ , будут приблизительно соответствовать статусом этих состояний.

Сечение поглощения  $\text{Ar}_2^+$  увеличивается при увеличении как температуры газа, так и длины волны в диапазоне 200–240 нм [39]. Мы уже отмечали, что максимум излучения третьего континуума лежит в диапазоне 210–240 нм при изменении давления от 1 до 17 атм. Увеличение сечения поглощения с увеличением длины волны излучения происходит достаточно быстро (табл.1). Примем его равным  $2 \cdot 10^{-19} \text{ см}^2$ . Это сечение соответствует левой границе (210 нм) максимума излучения третьего континуума, причем оно является существенно заниженным для остальной области излучения. Отметим также, что в модели учтен тот факт, что скорость реакции конверсии

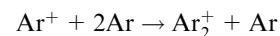


Табл.1. Зависимость сечений поглощения ионов  $\text{Ar}_2^+$  от длины волны и температуры (взята из работы [39]).

Длина волны (нм)	$\sigma (\text{см}^2)$	
	300 К	600 К
200	$2.73 \cdot 10^{-20}$	$2.84 \cdot 10^{-19}$
210	$1.60 \cdot 10^{-19}$	$9.44 \cdot 10^{-19}$
220	$6.73 \cdot 10^{-19}$	$2.34 \cdot 10^{-18}$
230	$2.17 \cdot 10^{-18}$	$4.91 \cdot 10^{-18}$
240	$5.38 \cdot 10^{-18}$	$8.57 \cdot 10^{-18}$
250	$1.11 \cdot 10^{-17}$	$1.34 \cdot 10^{-17}$
260	$1.89 \cdot 10^{-17}$	$1.85 \cdot 10^{-17}$

Табл.2. Сечения поглощения, использованные при моделировании.

Реагент активной среды	$\sigma$ (см <sup>2</sup> )
Ar <sub>2</sub> <sup>+</sup>	2·10 <sup>-19</sup>
Ar <sub>2</sub> <sup>**</sup>	3·10 <sup>-18</sup>
Ar <sub>2</sub> <sup>*</sup>	10 <sup>-18</sup>
Ar <sup>**</sup>	3·10 <sup>-18</sup>
Ar <sup>*</sup>	10 <sup>-20</sup>

снижается при увеличении газовой температуры, а именно она равна  $T^{-3/4} 1.62 \cdot 10^{-32}$  см<sup>6</sup>/с, где  $T$  взято в электронвольтах; при  $T = 0.026$  эВ (300 К) скорость реакции совпадает со значением  $2.5 \cdot 10^{-31}$  см<sup>6</sup>/с, полученным из эксперимента.

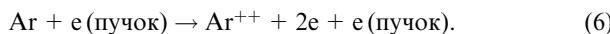
Сечение поглощения Ar<sub>2</sub><sup>\*</sup> составляет примерно  $10^{-18}$  см<sup>2</sup> [50] или  $4 \cdot 10^{-18}$  см<sup>2</sup> [51], сечение поглощения Ar<sup>\*\*</sup> –  $3 \cdot 10^{-18}$  см<sup>2</sup> [51]. Для вычисления подобных сечений часто используется формула Крамерса [52]  $\sigma = (J/\hbar\omega)^3 8.32 \cdot 10^{-18}$  см<sup>2</sup>, где  $J$  – потенциал ионизации с возбужденного уровня; для наших данных эта формула приводит к примерно такому же значению. Сечение поглощения Ar<sup>\*</sup> равно  $10^{-20}$  см<sup>2</sup> [51]. При моделировании будем использовать сечения, приведенные в табл.2. Сечение поглощения Ar<sub>2</sub><sup>\*\*</sup> взято таким же, как и для Ar<sup>\*\*</sup>.

Видно, что по возможности мы выбрали заниженные сечения поглощения, что будет способствовать генерации. Однако если и при такой благоприятной для генерации ситуации коэффициенты усиления будут отрицательны, это приведет к очень жесткому выводу о невозможности генерации.

## 2.2. Кинетика формирования двухзарядного иона

Хотя, как это отмечено в разд.2, двухзарядные ионы дают незначительный вклад в излучение третьих континуумов в интересующей нас области давлений, мы, тем не менее, решили проверить вероятность генерации и при этой гипотетической возможности.

Согласно [12, 37], заселение излучающих в третьем континууме состояний двухзарядных ионов должно происходить следующим образом. Атомарные двухзарядные ионы образуются в одном акте за счет удара быстрого электрона пучка:



Далее должны иметь место конверсия



и излучение



которое в работах [12, 13] отнесено к третьему континууму.

Кроме того, в работе [37] отмечается, что объяснить экспериментальные зависимости интенсивности излучения от давления можно только в предположении, что состояние Ar<sup>++</sup> разрушается в результате реакции



Эта реакция, по мнению авторов [37], должна иметь огромную скорость  $1.3 \cdot 10^{-30}$  см<sup>6</sup>/с, практически равную

скорости конверсии. Однако такая большая скорость этой реакции не может реализоваться ввиду большого дефекта энергии (подробнее см. [28]). Согласно как экспериментальным, так и теоретическим результатам скорость ухода двухзарядных атомарных ионов при взаимодействии с двумя атомами аргона составляет  $1.5 \cdot 10^{-30}$  см<sup>6</sup>/с и приписывается реакции конверсии. Вместе с этим, для того чтобы суммарная скорость реакций (7) и (9) не превышала  $1.5 \cdot 10^{-30}$  см<sup>6</sup>/с, скорость реакции (7) была снижена авторами [37] примерно до  $2 \cdot 10^{-31}$  см<sup>6</sup>/с.

Для проверки возможности генерации в предположении, что третий континуум образован излучением двухзарядных молекулярных ионов, в кинетическую модель были включены также реакции (6) – (8). Отсутствие реакции (9) является обстоятельством, только способствующим генерации. Следует еще раз отметить, что, как показано в [38], гипотеза излучения двухзарядных ионов не в состоянии объяснить большую совокупность экспериментальных данных по третьим континуумам.

Согласно [45], при  $E = 1$  кэВ сечение образования двухзарядного иона составляет 5 % сечения образования однозарядного иона, так что

$$v(\text{Ar}^{++}) = 0.05v.$$

Это соотношение использовалось для реакции (6). Скорость реакции (7) принималась равной  $1.4 \cdot 10^{-30}$  см<sup>6</sup>/с (подробнее см. [25, 28]). Радиационное время жизни иона Ar<sub>2</sub><sup>++</sup> принималось равным 5 нс – экспериментально полученному радиационному времени жизни третьего континуума.

Сечение вынужденного излучения оценим по формуле

$$\sigma_{++}^{(3)'} = \frac{\lambda^2}{4\Delta\omega} A = \frac{\lambda^4}{8\pi c\Delta\lambda} A$$

с тем же значением  $\Delta\lambda^{(3)}$ , которое использовалось выше при оценке сечения вынужденного излучения для однозарядных молекулярных ионов. При  $A = 1/(5 \cdot 10^{-9} \text{ с}) = 2 \cdot 10^8 \text{ с}^{-1}$  получаем  $\sigma_{++}^{(3)} = 5.3 \cdot 10^{-18}$  см<sup>2</sup>. Однако среди состояний Ar<sub>2</sub><sup>++</sup> только состояния  $2^3P_g$  имеют радиационное время жизни, приблизительно равное 5 нс ( $\tau > 6.4$  нс [35]); остальные состояния ( $2^3P_u$  ( $\tau > 15$  нс) и  $1^3\Sigma_u^-$  ( $\tau \sim 250$  нс)) имеют намного большие времена жизни [35]. Учитывая также относительный статус вес состояния  $2^3P_g$  среди всех состояний Ar<sub>2</sub><sup>++</sup>, получаем, что при рассмотрении общей населенности уровней Ar<sub>2</sub><sup>++</sup> эффективное сечение вынужденного излучения должно быть по крайней мере в два раза меньше приведенного. Примем поэтому, что

$$\sigma_{++}^{(3)} = \sigma^{(3)} = 3 \cdot 10^{-18} \text{ см}^2.$$

В рассмотренных моделях учтены реакции образования только димерных состояний возбужденных ионов. При больших давлениях будут эффективно образовываться и тримеры; тем не менее данный подход справедлив и при больших давлениях. Учет кинетики образования и разрушения тримеров приведет к изменению реакций, образующих Ar<sub>2</sub><sup>\*\*</sup>(Ar<sub>2</sub><sup>++</sup>): появятся реакции образования Ar<sub>2</sub><sup>\*\*</sup>(Ar<sub>2</sub><sup>++</sup>) и Ar<sub>3</sub><sup>\*\*</sup>(Ar<sub>3</sub><sup>++</sup>). Однако если мы не будем разделять в излучении третьего континуума вклады димерных и тримерных состояний возбужденных однозарядных (двухзарядных) ионов, то учет тримеров не

Табл.3. Коэффициенты усиления и поглощения (в см<sup>-1</sup>), приведенные для моментов времени, когда достигается максимум концентраций Ar<sub>2</sub><sup>+(1)</sup> ( $\kappa^- = \kappa^-(Ar_2^+) + \kappa^-(Ar_2^{**}) + \kappa^-(Ar_2^*) + \kappa^-(Ar^{**}) + \kappa^-(Ar^*)$ ). Интенсивность накачки связана с частотой ионизации как  $W = 112pv$ , где  $W$  выражено в Вт/см<sup>3</sup>,  $v$  – в обратных секундах, а  $p$  – в атмосферах.

$p$ (атм)	$v$ (с <sup>-1</sup> )	$\kappa^+(Ar_2^{+(1)}) - \kappa^-$	$\kappa^+(Ar_2^{++}) - \kappa^-$	$\kappa^+(Ar_2^{+(1)})$	$\kappa^+(Ar_2^{++})$	$\kappa^-(Ar_2^+)$	$\kappa^-(Ar_2^{**})$	$\kappa^-(Ar_2^*)$	$\kappa^-(Ar^{**})$	$\kappa^-(Ar^*)$
1	10 <sup>5</sup>	-9.51·10 <sup>-3</sup>	-9.34·10 <sup>-3</sup>	2.99·10 <sup>-5</sup>	6.19·10 <sup>-5</sup>	-3.31·10 <sup>-4</sup>	-3.53·10 <sup>-4</sup>	-4.61·10 <sup>-4</sup>	-8.35·10 <sup>-3</sup>	-7.71·10 <sup>-5</sup>
	10 <sup>4</sup>	-8.63·10 <sup>-3</sup>	-8.60·10 <sup>-3</sup>	1.27·10 <sup>-5</sup>	2.77·10 <sup>-5</sup>	-3.25·10 <sup>-4</sup>	-3.14·10 <sup>-4</sup>	-5.90·10 <sup>-4</sup>	-7.33·10 <sup>-3</sup>	-6.81·10 <sup>-5</sup>
	10 <sup>3</sup>	-1.90·10 <sup>-3</sup>	-1.82·10 <sup>-3</sup>	2.99·10 <sup>-7</sup>	7.49·10 <sup>-6</sup>	-1.22·10 <sup>-4</sup>	-4.35·10 <sup>-5</sup>	-3.64·10 <sup>-4</sup>	-1.28·10 <sup>-3</sup>	-1.48·10 <sup>-5</sup>
	10 <sup>2</sup>	-1.46·10 <sup>-4</sup>	-1.23·10 <sup>-4</sup>	1.71·10 <sup>-8</sup>	8.83·10 <sup>-7</sup>	-2.72·10 <sup>-5</sup>	-1.87·10 <sup>-6</sup>	-2.79·10 <sup>-5</sup>	-6.60·10 <sup>-5</sup>	-9.52·10 <sup>-7</sup>
	10	-8.50·10 <sup>-6</sup>	-8.05·10 <sup>-6</sup>	1.56·10 <sup>-9</sup>	9.08·10 <sup>-8</sup>	-3.54·10 <sup>-6</sup>	-5.51·10 <sup>-8</sup>	-2.46·10 <sup>-6</sup>	-2.01·10 <sup>-6</sup>	-7.58·10 <sup>-8</sup>
3	10 <sup>5</sup>	-4.74·10 <sup>-2</sup>	-4.81·10 <sup>-2</sup>	1.76·10 <sup>-4</sup>	1.66·10 <sup>-4</sup>	-1.84·10 <sup>-3</sup>	-4.58·10 <sup>-3</sup>	-6.99·10 <sup>-3</sup>	-3.45·10 <sup>-2</sup>	-3.10·10 <sup>-4</sup>
	10 <sup>4</sup>	-2.54·10 <sup>-2</sup>	-2.53·10 <sup>-2</sup>	1.52·10 <sup>-5</sup>	7.82·10 <sup>-5</sup>	-9.40·10 <sup>-4</sup>	-1.64·10 <sup>-3</sup>	-1.13·10 <sup>-2</sup>	-1.13·10 <sup>-2</sup>	-1.42·10 <sup>-4</sup>
	10 <sup>3</sup>	-3.11·10 <sup>-3</sup>	-2.96·10 <sup>-3</sup>	6.82·10 <sup>-7</sup>	1.11·10 <sup>-5</sup>	-2.20·10 <sup>-4</sup>	-6.88·10 <sup>-5</sup>	-2.10·10 <sup>-3</sup>	-5.75·10 <sup>-4</sup>	-1.01·10 <sup>-5</sup>
	10 <sup>2</sup>	-3.19·10 <sup>-4</sup>	-2.94·10 <sup>-4</sup>	5.86·10 <sup>-8</sup>	1.20·10 <sup>-6</sup>	-5.96·10 <sup>-5</sup>	-3.69·10 <sup>-6</sup>	-1.91·10 <sup>-4</sup>	-4.05·10 <sup>-5</sup>	-7.17·10 <sup>-7</sup>
	10	-2.47·10 <sup>-5</sup>	-2.41·10 <sup>-5</sup>	5.61·10 <sup>-9</sup>	1.23·10 <sup>-7</sup>	-1.05·10 <sup>-5</sup>	-1.19·10 <sup>-7</sup>	-1.22·10 <sup>-5</sup>	-1.42·10 <sup>-6</sup>	-4.07·10 <sup>-8</sup>
10	10 <sup>5</sup>	-2.12·10 <sup>-1</sup>	-2.11·10 <sup>-1</sup>	2.49·10 <sup>-4</sup>	6.27·10 <sup>-4</sup>	-5.84·10 <sup>-3</sup>	-2.85·10 <sup>-2</sup>	-1.26·10 <sup>-1</sup>	-5.05·10 <sup>-2</sup>	-7.42·10 <sup>-4</sup>
	10 <sup>4</sup>	-5.51·10 <sup>-2</sup>	-5.43·10 <sup>-2</sup>	1.38·10 <sup>-5</sup>	1.10·10 <sup>-4</sup>	-1.64·10 <sup>-3</sup>	-1.94·10 <sup>-3</sup>	-4.78·10 <sup>-2</sup>	-2.98·10 <sup>-3</sup>	-7.12·10 <sup>-5</sup>
	10 <sup>3</sup>	-8.16·10 <sup>-3</sup>	-8.03·10 <sup>-3</sup>	1.08·10 <sup>-6</sup>	1.32·10 <sup>-5</sup>	-4.16·10 <sup>-4</sup>	-8.42·10 <sup>-5</sup>	-7.37·10 <sup>-3</sup>	-1.72·10 <sup>-4</sup>	-3.91·10 <sup>-6</sup>
	10 <sup>2</sup>	-9.05·10 <sup>-4</sup>	-8.67·10 <sup>-4</sup>	1.00·10 <sup>-7</sup>	1.39·10 <sup>-6</sup>	-1.15·10 <sup>-4</sup>	-4.57·10 <sup>-6</sup>	-7.34·10 <sup>-4</sup>	-1.36·10 <sup>-5</sup>	-2.52·10 <sup>-7</sup>
	10	-7.73·10 <sup>-5</sup>	-7.70·10 <sup>-5</sup>	9.79·10 <sup>-9</sup>	1.41·10 <sup>-7</sup>	-2.77·10 <sup>-5</sup>	-2.37·10 <sup>-7</sup>	-4.83·10 <sup>-5</sup>	-8.36·10 <sup>-7</sup>	-1.54·10 <sup>-8</sup>
30	10 <sup>5</sup>	-4.47·10 <sup>-1</sup>	-4.48·10 <sup>-1</sup>	1.92·10 <sup>-4</sup>	8.97·10 <sup>-4</sup>	-1.08·10 <sup>-2</sup>	-3.17·10 <sup>-2</sup>	-3.92·10 <sup>-1</sup>	-1.40·10 <sup>-2</sup>	-3.77·10 <sup>-4</sup>
	10 <sup>4</sup>	-1.18·10 <sup>-1</sup>	-1.18·10 <sup>-1</sup>	1.46·10 <sup>-5</sup>	1.24·10 <sup>-4</sup>	-3.07·10 <sup>-3</sup>	-2.24·10 <sup>-3</sup>	-1.11·10 <sup>-1</sup>	-1.02·10 <sup>-3</sup>	-2.97·10 <sup>-5</sup>
	10 <sup>3</sup>	-2.11·10 <sup>-2</sup>	-2.07·10 <sup>-2</sup>	1.24·10 <sup>-6</sup>	1.41·10 <sup>-5</sup>	-7.64·10 <sup>-4</sup>	-1.08·10 <sup>-4</sup>	-1.97·10 <sup>-2</sup>	-6.47·10 <sup>-5</sup>	-1.60·10 <sup>-6</sup>
	10 <sup>2</sup>	-2.40·10 <sup>-3</sup>	-2.33·10 <sup>-3</sup>	1.18·10 <sup>-7</sup>	1.46·10 <sup>-6</sup>	-2.02·10 <sup>-4</sup>	-5.19·10 <sup>-6</sup>	-2.12·10 <sup>-3</sup>	-4.77·10 <sup>-6</sup>	-8.83·10 <sup>-8</sup>
10	-2.31·10 <sup>-4</sup>	-2.18·10 <sup>-4</sup>	1.16·10 <sup>-8</sup>	1.47·10 <sup>-7</sup>	-5.53·10 <sup>-5</sup>	-3.33·10 <sup>-7</sup>	-1.62·10 <sup>-4</sup>	-3.85·10 <sup>-7</sup>	-5.75·10 <sup>-9</sup>	

приведет к существенным изменениям результатов, поскольку скорости реакций димеров с какими-либо реагентами и аналогичных реакций тримеров с теми же реагентами приблизительно равны.

### 3. Обсуждение результатов

В целях выявления условий, при которых возможна генерация, рассчитывались коэффициенты усиления слабого сигнала в диапазоне частот ионизации  $v = 10 - 10^5$  с<sup>-1</sup> (что соответствует удельным мощностям накачек  $w = 10^{-3} - 10$  МВт/(см<sup>3</sup>·атм)) и давлений  $p = 1 - 30$  атм. Ниже давления  $p = 1$  атм интенсивность излучения третьих континуумов мала [38]. При частоте ионизации  $v = 10^5$  с<sup>-1</sup> расчетная газовая температура  $T$  к концу импульса накачки составляет  $\sim 0.2$  эВ. С дальнейшим увеличением частоты ионизации газовая температура будет еще больше, и непосредственно использовать данную модель уже нельзя. Необходимо будет учитывать реакции разрушения молекулярных нейтральных и ионных состояний ударом тяжелых частиц (атомов аргона). Однако эти реакции только уменьшают возможность генерации. Не видно причин, по которым условия генерации для  $v > 10^5$  с<sup>-1</sup> улучшатся по сравнению с условиями для  $v < 10^5$  с<sup>-1</sup>, в силу чего  $v = 10^5$  с<sup>-1</sup> было предельной частотой ионизации в нашем моделировании.

В расчетах длительность импульса накачки составляла 100 нс на полувысоте, что характерно для возбуждения экспликсных и эксимерных лазеров. Результаты расчетов приведены в табл.3. Коэффициенты усиления слабого сигнала были отрицательными в течение всего времени счета (до 200 нс). В табл.3 они приведены для моментов достижения максимумов концентраций Ar<sub>2</sub><sup>+(1)</sup>. Отметим, что для данной таблицы времена достижения

максимумов концентраций Ar<sub>2</sub><sup>+(1)</sup> и Ar<sub>2</sub><sup>++</sup> различаются для  $p = 1$  атм,  $v = 10^3 - 10^5$  с<sup>-1</sup> и  $p = 3$  атм,  $v = 10^4 - 10^5$  с<sup>-1</sup>; для остальных  $p$  и  $v$  эти времена совпадают или почти совпадают.

Видно, что нет областей, где коэффициент усиления  $\kappa = \kappa^+ - \kappa^-$  положителен. Более того, каждый из коэффициентов поглощения на различных компонентах, за исключением Ar<sup>\*</sup>, во всей исследованной области превышает  $\kappa^+$ , причем некоторые  $\kappa^-$  превышают  $\kappa^+$  на несколько порядков. Отсутствие или наличие поглощения на Ar<sub>2</sub><sup>+</sup> никак не скажется на возможности генерации. Более того, если бы сечения вынужденного излучения в 10 и более раз превышали использованные при моделировании, то и это не привело бы к положительности  $\kappa$ . Напомним также, что для поглощения излучения состояниями Ar<sub>2</sub><sup>+</sup> и Ar<sub>2</sub><sup>\*</sup> были выбраны наименьшие из известных сечений поглощения. Все это вместе взятое говорит о невозможности генерации на третьем континууме.

### Выводы

Как следует из [11, 38], третьи континуумы в инертных газах при  $p \geq 1$  атм в основном определяются излучением однократно возбужденных молекулярных ионов. На основе нестационарной кинетической модели проанализирована возможность генерации на третьем континууме в аргоне. Хотя с помощью излучения двухзарядных молекулярных ионов нельзя объяснить третьи континуумы инертных газов при указанных давлениях, тем не менее проанализирована возможность генерации и для этого гипотетического случая.

Проведенное рассмотрение показывает, что при  $p = 1 - 30$  атм и  $w = 10^{-3} - 10$  МВт/(см<sup>3</sup>·атм) генерация на третьем континууме в аргоне невозможна. По всей види-

мости, она невозможна и при  $w > 10 \text{ МВт}/(\text{см}^3 \cdot \text{атм})$ . Излучение третьих континуумов попадает в диапазон длин волн, в котором поглощение нейтральными атомарными и молекулярными возбужденными состояниями, а также молекулярными ионами очень велико. С другой стороны, в силу большой ширины третьих континуумов сечение вынужденного излучения оказывается небольшим. Это приводит к тому, что каждый из следующих перечисленных реагентов –  $\text{Ar}^{**}$ ,  $\text{Ar}_2^*$ ,  $\text{Ar}_2^{**}$ ,  $\text{Ar}_2^{++}$  – способен по отдельности исключить возможность генерации.

Третий континуумы пока не нашли применения. Из-за широкой полосы излучения наиболее вероятным из приложений окажется, возможно, их использование для калибровки спектральных приборов [11]. Теперь, после успехов, достигнутых в объяснении третьих континуумов, встает вопрос о природе континуумов с длинами волн, большими длин волн, соответствующих первым, вторым и третьим континуумам в инертных газах. В качестве объекта изучения следует, по-видимому, обратить внимание на континуум в области 230–500 нм в неоне (согласно работе [53], нижняя граница данного континуума может доходить до 120 нм), который очень хорошо наблюдается при разрядной накачке [11]. Поскольку между 90–100 нм (третий континуум в неоне) и 230 нм больше никаких полос в неоне не наблюдалось, то, учитывая традицию названий континуумов в инертных газах [1], этот континуум следует назвать четвертым континуумом неона.

Работа выполнена при поддержке гранта INTAS (№ 96 0351).

1. Klein G., Garvalho M.J. *J.Phys.B*, **14**, 1283 (1981).
2. Зайдель А.Н., Шрейдер Е.Я. *Вакуумная спектроскопия и ее применения* (М., Наука, 1976).
3. Герасимов Г.Н., Крылов Б.Е., Логинов А.В., Щукин С.А. *УФН*, **162**, 123 (1992).
4. Kochler H.A., Ferderber L.J., Redhead D.L., Ebert P.J. *Appl.Phys.Letts*, **21**, 198 (1972).
5. Wallace S.C., Hodgson R.T., Dreyfus R.W. *Appl.Phys.Letts*, **23**, 22 (1973).
6. Gerardo J.B., Johnson A.W. *IEEE J.Quantum Electron.*, **9**, 748 (1973).
7. Kochler H.A., Ferderber L.J., Redhead D.L., Ebert P.J. *Phys.Rev.A*, **12**, 968 (1975).
8. Wrobel W.-G., Rohr H., Steuer K.-H. *Appl.Phys.Letts*, **36**, 113 (1980).
9. Tanaka Y. *J.Opt.Soc.Amer.*, **45**, 710 (1955).
10. Tanaka Y., Jursa A.S., Le Blanc F.J. *J.Opt.Soc.Amer.*, **48**, 304 (1958).
11. Бойченко А.М., Тарасенко В.Ф., Фомин Е.А., Яковленко С.И. *Квантовая электроника*, **20**, 7 (1993).
12. Langhoff H. *Optics Comms.*, **68**, 31 (1988).
13. Langhoff H. *J.Phys.B*, **27**, L709 (1994).
14. Бойченко А.М., Держиев В.И., Жидков А.Г. и др. *Оптика и спектроскопия*, **68**, 5 (1990); Деп. ВИНТИ № 7459-888 (1988).
15. Амироп А.Х., Коршунов О.В., Чиннов В.Ф. *TBT*, **29**, 1066 (1991).
16. Amirov A.Kh., Korshunov O.V., Chinnov V.F. *J.Phys.B*, **27**, 1753 (1994).
17. Hill P.C. *Phys.Rev.A*, **43**, 2546 (1991).
18. Cachoncinlle C., Pouvesle J.M., Spiegelmann F., Durand G., Davanloo F., Collins C.B. *Proc.XX ICPIG* (1991, v. 6, p. 1398).
19. Bush B., Ulrich A., Krotz W., Ribitzki G. *Appl.Phys.Letts*, **53**, 1172 (1988).
20. Бойченко А.М., Держиев В.И., Жидков А.Г. и др. *Квантовая электроника*, **18**, 1419 (1991).
21. Куров В.С., Черникова Е.В., Янчарина А.М. *Изв.вузов. Сер. физика*, № 11, 20 (1992).
22. Cachoncinlle C., Pouvesle J.M., Durand G., Spiegelmann F. *J.Chem.Phys.*, **96**, 6093 (1992).
23. Asselman H., Rives P., Galy J., Brunet H., Teyssier J.L. *J.Phys.B*, **26**, 2311 (1993).
24. Robert E., Khasef A., Cachoncinlle C., Pouvesle J.M. *IEEE J.Quantum.Electron.*, **33**, 2119 (1997).
25. Бойченко А.М., Держиев В.И., Жидков А.Г. и др. *Квантовая электроника*, **24**, 697 (1997).
26. Ogurtsov A.N., Savchenko E.V., Becker J., Runne M., Zimmerer G. *J.Low Temp.Phys.*, **23**, 851 (1997).
27. Ogurtsov A.N., Savchenko E.V., Becker J., Runne M., Zimmerer G. *J.Luminesc.*, **76–77**, 478 (1998).
28. Бойченко А.М., Тарасенко В.Ф., Феденев А.В., Яковленко С.И. *Оптика и спектроскопия*, **85**, 925 (1998).
29. Griedel T., Drotleff H.W., Hammer J.W., Petkau K. *J.Chem.Phys.*, **93**, 4581 (1990).
30. Cachoncinlle C., Pouvesle J.M., Davanloo F., Coogan J.J., Collins C.B. *Optics Comms.*, **79**, 41 (1990).
31. Гущина Н.А., Никулин В.К. *Оптика и спектроскопия*, **71**, 432 (1991).
32. Zaitsevskii A.V., Demen'tev A.I. *Optics Comms.*, **86**, 461 (1991).
33. Krotz W., Ulrich A., Bush B., Ribitzki G., Wieser J. *Phys.Rev.A*, **43**, 6089 (1991).
34. Cachoncinlle C., Pouvesle J.M., Durand G., Spiegelmann F. *J.Chem.Phys.*, **96**, 6085 (1992).
35. Daskalopoulou M., Peyerimhoff S.D. *Mol.Phys.*, **79**, 985 (1993).
36. Cachoncinlle C., Spiegelmann F., Pouvesle J.M. *Proc.XII Europ. Conf. on the Atomic and Molecular Physics of Ionizing Gases* (Eindhoven: de Hoog, 1994, p. 69).
37. Schumann M., Langhoff H. *J.Chem.Phys.*, **101**, 4769 (1994).
38. Boichenko A.M., Tarasenko V.F., Yakovlenko S.I. *Laser Phys.*, **9**, 1004 (1999).
39. Wadt W.R. *J.Chem.Phys.*, **73**, 3915 (1988).
40. Wang Q., Liu X.-L., Men Z.-W., Wang Z.-X., Liu J.-C., Ma Z.-U. *Proc.CLEO'94* (Anaheim, USA, 1994).
41. Zhao Y.-P., Wang Q., Gao Z.-L., Liu J.-C., Peng S.-D. *Proc. of the IV Sino-Russian-Korean Symposium Laser Phys. and Laser Technology* (Harbin, China, 1998, p. 65).
42. Zhao Y.-P., Wang Q., Gao S.-H., Liu J.-C. *Proc.SPIE*, **3549**, 221 (1998).
43. Яковленко С.И. (ред.) *Труды ИОФАН*, **21**, (1989).
44. Li G.P., Takayanagi T., Wakiya K., Suzuki H. *Phys.Rev.A*, **38**, 1831 (1988).
45. Krishnakumar E., Srivastava S.K. *J.Phys.B*, **21**, 1055 (1988).
46. Артеев М.С., Кузнецов А.А., Скакун В.С. и др. *Препринт Томского филиала CO AH СССР № 10* (Томск, 1987).
47. Lorents D.C. *Physica BC*, **82**, 19 (1976).
48. Werner C.W., George E.V., Hoff P.W., Rhodes C.K. *IEEE J.Quantum Electron.*, **13**, 769 (1977).
49. Лакоба И.С., Яковленко С.И. *Квантовая электроника*, **7**, 677 (1980).
50. Rescigno T.N., Hazi A.U., Orel A.E. *J.Chem.Phys.*, **68**, 5283 (1978).
51. Rhodes C.K. (ed.) *Excimer Lasers* (Berlin, Springer-Verlag, 1994).
52. Держиев В.И., Жидков А.Г., Яковленко С.И. *Излучение ионов в неравновесной плотной плазме* (М., Энергоатомиздат, 1986).
53. Johnson D.E. *Chem.Phys.Letts*, **238**, 71 (1995).

**A.M.Boichenko, S.I.Yakovlenko. Analysis of the possibility of lasing on the third continuum in argon.**

The possibility of lasing on the third continuum in argon was studied theoretically. This possibility is considered from the point of view of two hypotheses on the nature of the third continua, which have survived by the mid-90s. The gain coefficients were calculated under conditions when the oscillation is most probable, namely, in the pressure range between 1 and 30 bar pressure and for specific pump power in the range between  $10^{-3}$  and  $10 \text{ MW cm}^{-3} \text{ bar}^{-1}$ . The gain coefficient is shown to be negative under the above conditions and, hence, lasing cannot be achieved.