

Кинетика возбуждения первой отрицательной системы азота ионизирующим излучением

М.У.Хасенов

По люминесценции на переходе 0–0 первой отрицательной системы азота в смесях гелия и азота с водородом, криптоном или дейтерием при возбуждении α -частицами ^{210}Po определены константы скоростей процессов тушения $N_2^+(B)$ азотом и гелием, а также двух- и трехчастичных процессов перезарядки He_2^+ на H_2 , D_2 и Kr .

Ключевые слова: азот, первая отрицательная система, кинетика, ионизирующая накачка.

Селективность расселения состояний $V^2\Sigma_u^+$ и $X^2\Sigma_g^+$ иона N_2^+ молекулами водорода позволила создать эффективный квазинепрерывный лазер на первой отрицательной системе азота [1, 2]. Кинетика процессов в смеси $He - N_2 - H_2$ изучена в [3] по люминесценции на переходе 0–0 первой отрицательной системы азота при возбуждении электронным пучком с длительностью импульса 1.5 мкс. Однако значения констант скоростей процессов, измеренные в [3], заметно отличаются от приведенных в [4, 5].

В настоящей работе определены константы скоростей ряда процессов в смесях $He - N_2 - H_2$ (Kr , D_2) по люминесценции на переходе 0–0 первой отрицательной системы азота ($\lambda = 391$ нм) при возбуждении α -частицами ^{210}Po . Криптон и дейтерий так же эффективно, как и водород, расселяют $X^2\Sigma_g^+$ -состояние N_2^+ [6] и тоже представляют интерес для квазинепрерывной генерации на первой отрицательной системе азота. Использование в качестве ионизатора α -источников обеспечивает высокую стабильность мощности накачки по сравнению с использованием электронного пучка или других способов возбуждения.

Экспериментальная установка описана в [7]. В камере из нержавеющей стали располагались 18 источников с ^{210}Po с суммарной активностью $\sim 7 \times 10^9$ Бк. Объем области возбуждения составлял 40 см^3 , удельная мощность накачки была равна $\sim 5 \times 10^{-5} \text{ Вт/см}^3$ (при давлении основного газа гелия 4 атм). Спектры излучения анализировались с помощью монохроматора SPM-2 и ФЭУ-106, работающего в режиме счета фотонов. Использовались He (чистота 99.99%), N_2 (99.998%), Kr (99.999%). Дейтерий (не более 0.2% примесей) и технический водород пропускались через ловушки с силикагелем и активной медью, баллоны с этими газами при напуске охлаждались жидким азотом.

Основные кинетические процессы в смесях $He - N_2 - H_2$ (Kr , D_2) высокого давления при ионизирующей на-

качке приведены в табл.1. Измеренные нами константы скоростей процессов сравниваются в основном с результатами работ [3–5, 10], ссылки на другие работы и их обсуждение содержатся в [3]. В табл.1 не показаны процессы электрон-ионной рекомбинации, т.к. они полностью подавлены конкурирующими процессами (1–5 и другими). Согласно оценкам, концентрация электронов n_e в смесях с He (при давлении до 6 атм) не превышает $\sim 10^{12} \text{ см}^{-3}$ даже в треке α -частицы. Поскольку интенсивность люминесценции измерялась в относительных единицах, для определения абсолютных значений констант необходимо использовать эталонные скорости на соответствующих этапах кинетической цепи процессов [3]. При анализе тушения верхнего лазерного уровня таким эталоном была вероятность спонтанного распада v_{sp} (процесс 9), а для перезарядки He_2^+ на компонентах смеси – двухчастичная и трехчастичная константы скорости перезарядки He_2^+ на азоте (процессы 4 и 5). Мощность накачки в исследованном диапазоне давлений компонентов смесей пропорциональна полному давлению газовой смеси.

На рис.1 приведена зависимость $1/I$ от давления азота, а на рис.2 – зависимость параметра p/I от давления гелия в смеси $He - N_2$ (где p – давление смеси, I – интенсивность люминесценции на $\lambda = 391$ нм). Обработка результатов по схеме из [3] приводила для некоторых смесей к отрицательным значениям скоростей дезактивации состояния $V_{v=0}$ (v_B в обозначениях [3]). Поэтому, в отличие от [3], где обработка результатов проводилась в предположении, что единственным каналом заселения верхнего лазерного уровня является перезарядка на N_2 только тех ионов He_2^+ , которые образовались в результате конверсии He^+ (процессы 1, 4 и 5), в настоящей работе предполагалось, что существуют и другие заметные каналы (при преобладании процессов 4 и 5) заселения $N_2^+(B)$, в связи с чем скорость заселения состояния $V_{v=0}$ пропорциональна скорости ионизации смеси. Одним из таких каналов является ассоциативная ионизация возбужденных состояний гелия: $He^* + He \rightarrow He_2^+ + e$, с последующей перезарядкой молекулярного иона на атоме азота.

Тогда для измеряемой на $\lambda = 391$ нм интенсивности люминесценции в смеси получим выражение

М.У.Хасенов. ТОО «Наука Л», Казахстан, 050062 Алма-Ата, ул. Утеген батыра, 112; e-mail: nauka_l@nursat.kz

Поступила в редакцию 28 октября 2004 г., после доработки – 26 сентября 2005 г.

Табл.1.

Номер процесса	Процесс	Константа скорости, вероятность	Значение	Литература
1	$\text{He}^+ + 2\text{He} \rightarrow \text{He}_2^+ + \text{He}$	$k_1, 10^{-31} \text{ см}^6 \cdot \text{с}^{-1}$	1.1	[6]
2	$\text{He}^+ + \text{N}_2 \rightarrow \text{продукты}$	$k_2, 10^{-9} \text{ см}^3 \cdot \text{с}^{-1}$	1.2	[6]
3	$\text{He}^+ + \text{N}_2 + \text{He} \rightarrow \text{продукты}$	$k_3, 10^{-29} \text{ см}^6 \cdot \text{с}^{-1}$	2.2	[8]
4	$\text{He}_2^+ + \text{N}_2 \rightarrow \text{N}_2^+ + 2\text{He}$	$k_4, 10^{-10} \text{ см}^3 \cdot \text{с}^{-1}$	11	[9]
4a	$\text{He}_2^+ + \text{N}_2 \rightarrow \text{N}_2^+(\text{B}_{v=0}) + 2\text{He}$		3 ± 1	[4, 5]
5	$\text{He}_2^+ + \text{N}_2 + \text{He} \rightarrow \text{N}_2^+ + 3\text{He}$	$k_5, 10^{-30} \text{ см}^6 \cdot \text{с}^{-1}$	16 ± 3	[3, 9]
5a	$\text{He}_2^+ + \text{N}_2 + \text{He} \rightarrow \text{N}_2^+(\text{B}_{v=0}) + 3\text{He}$		3 ± 1	[4, 5]
6	$\text{N}_2^+(\text{B}) + \text{N}_2 \rightarrow \text{продукты}$	$k_6, 10^{-11} \text{ см}^3 \cdot \text{с}^{-1}$	9 ± 2	Настоящая работа, [3] [4]
			5.1 ± 0.9	
7	$\text{N}_2^+(\text{B}) + \text{He} \rightarrow \text{продукты}$	$k_7, 10^{-13} \text{ см}^3 \cdot \text{с}^{-1}$	11 ± 3	Настоящая работа [3] [4]
			8 ± 2	
			5.4 ± 0.8	
8	$\text{N}_2^+(\text{B}) + \text{N}_2 + \text{He} \rightarrow \text{продукты}$	$k_8, 10^{-30} \text{ см}^6 \cdot \text{с}^{-1}$	2 ± 0.5	Настоящая работа [4, 5]
			≤ 1	
9	$\text{N}_2^+(\text{B}) \rightarrow \text{N}_2(\text{X}) + h\nu$	$\nu_{\text{sp}}, 10^7 \text{ с}^{-1}$	1.6	[11]
			10 ± 3	
10	$\text{He}_2^+ + \text{H}_2 \rightarrow \text{продукты}$	$k_{10}, 10^{-10} \text{ см}^3 \cdot \text{с}^{-1}$	4.1	Настоящая работа [10] [3] [4]
			24 ± 4	
			4.5 ± 1	
11	$\text{He}_2^+ + \text{H}_2 + \text{He} \rightarrow \text{продукты}$	$k_{11}, 10^{-30} \text{ см}^6 \cdot \text{с}^{-1}$	15 ± 5	Настоящая работа [4, 5] [10]
			≤ 1	
			9 ± 5	
12	$\text{He}_2^+ + \text{Kr} \rightarrow \text{продукты}$	$k_{12}, 10^{-11} \text{ см}^3 \cdot \text{с}^{-1}$	8 ± 3	Настоящая работа [10]
			≤ 8	
13	$\text{He}_2^+ + \text{Kr} + \text{He} \rightarrow \text{продукты}$	$k_{13}, 10^{-30} \text{ см}^6 \cdot \text{с}^{-1}$	3 ± 1	Настоящая работа [10]
			17 ± 3	
14	$\text{He}_2^+ + \text{D}_2 \rightarrow \text{продукты}$	$k_{14}, 10^{-10} \text{ см}^3 \cdot \text{с}^{-1}$	8 ± 3	Настоящая работа
15	$\text{He}_2^+ + \text{D}_2 + \text{He} \rightarrow \text{продукты}$	$k_{15}, 10^{-30} \text{ см}^6 \cdot \text{с}^{-1}$	< 2	Настоящая работа

$$I = CW/q, \quad (1)$$

где C – коэффициент, пропорциональный чувствительности системы регистрации излучения; W – мощность накачки смеси; q – полная скорость дезактивации состояния $\text{B}_{v=0}$, т. е. $q \sim W/I \sim p/I$.

Из рис.1 видно, что зависимость $q(p_{\text{N}_2})$ с достаточной точностью линейна и в исследованном диапазоне давле-

ний гелия и азота влияние трехчастичных процессов с участием иона N_2^+ и двух молекул азота на населенность B -состояния незначительно, что согласуется с результатами работы [3]. Зависимость $q(p_{\text{N}_2})$ при разных давлениях азота (рис.2) показывает необходимость учета трехчастичных процессов 8. Тогда для скорости дезактивации состояния $\text{B}_{v=0}$ получим выражение

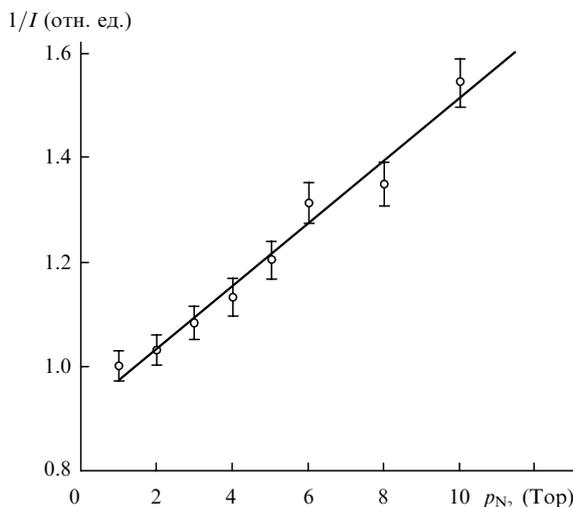


Рис.1. Зависимость обратной интенсивности люминесценции от давления азота p_{N_2} в смеси He (4 атм) – N_2 .

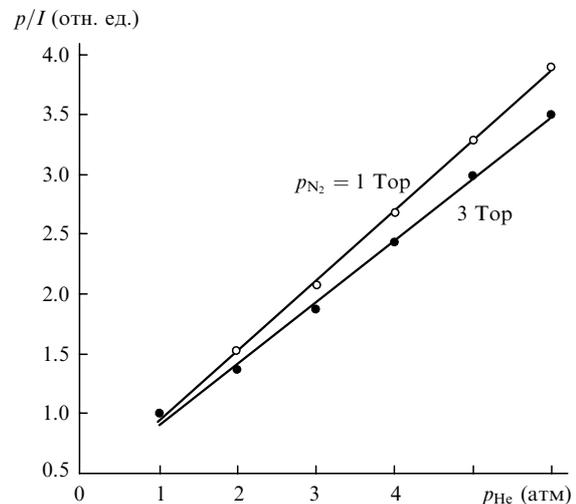


Рис.2. Зависимости параметра p/I от давления гелия p_{He} в смесях $\text{He} - \text{N}_2$ при разных давлениях азота p_{N_2} .

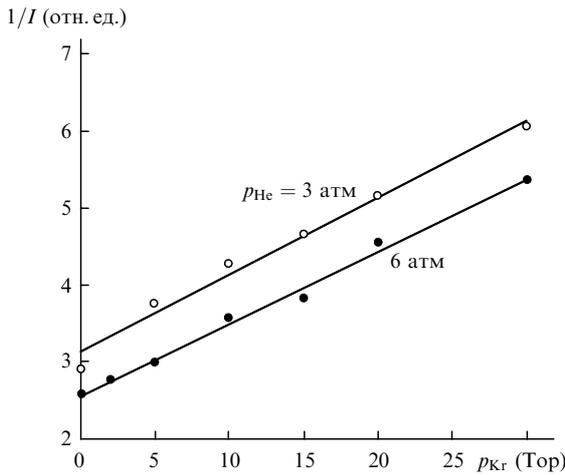


Рис.3. Зависимости обратной интенсивности люминесценции от давления криптона p_{Kr} в смеси He–N₂ (4 Тор)–Kr при разных давлениях гелия p_{He} .

$$q = v_{sp} + k_6[N_2] + k_7[He] + k_8[N_2][He]. \quad (2)$$

Из данных рис.1 и 2 и известного значения v_{sp} находим константы скоростей k_6 , k_7 и k_8 (табл.1). Полученные нами значения k_6 , k_7 хорошо согласуются с измеренными в [3]. Напомним, что обработка результатов наших измерений согласно [3] приводила к недопустимым значениям параметров и соответственно констант скоростей процессов.

На рис.3 приведены зависимости обратной интенсивности люминесценции от давления криптона (аналогичные зависимости измерены для водорода и дейтерия). Они также линейны, что свидетельствует о решающей роли либо процессов перезарядки He_2^+ на Kr, либо тушения $N_2^+(B)$ криптоном. Для водорода преобладающая роль процессов перезарядки по сравнению с тушением молекулами водорода показана в [1, 3], для криптона и дейтерия также будем предполагать, что константы тушения состояния $v_{v=0}$ малы. Известно, что процесс перезарядки He^+ на H₂ и D₂ практически отсутствует, а константа скорости соответствующего процесса с криптоном, по аналогии с Ag и Xe, должна быть также малой [6]. В смеси He (3–6 атм)–N₂ (4 Тор), даже при оценке с использованием констант $k_1 - k_5$, более 70 % ионов He^+ конвертируется в ионы He_2^+ . Ассоциативная ионизация возбужденных состояний гелия также приводит к образованию ионов He_2^+ . В связи с этим в качестве основного механизма снижения интенсивности люминесценции на $\lambda = 391$ нм при добавлении криптона (водорода, дейтерия) в смесь будем рассматривать перезарядку He_2^+ на Kr (H₂, D₂).

Тогда для обратной интенсивности получим выражение

$$\frac{I_0}{I} = 1 + \frac{(k_{12} + k_{13}[He])[Kr]}{(k_4 + k_5[He])[N_2]}, \quad (3)$$

где I_0 – интенсивность гелий-азотной смеси без криптона. Из рис.3, пользуясь известными значениями констант k_4 и k_5 , находим константы k_{12} , k_{13} . Измеренные таким образом константы скоростей перезарядки He_2^+ на Kr (H₂, D₂) приведены в табл.1. Константы k_{11} , k_{12} хорошо согласуются с полученными в [10], заметно отличается от приведенного в [10] значение k_{13} . На наш взгляд, «эффективное» значение константы скорости k_{13} для трехчастичного процесса перезарядки He_2^+ на Kr зависит от давления криптона. Аналогичный вывод для константы скорости двухчастичного процесса перезарядки He_2^+ на Ne можно сделать из рис.10 работы [9], где измеренная частота перезарядки He_2^+ насыщается при давлении неона свыше 0.3 Тор. Парциальное давление криптона в настоящей работе составляло 2–30 Тор, что на два порядка выше, чем в [10]. По-видимому, с этим связано резкое отличие измеренного в настоящей работе значения k_{13} от приведенного в [10].

Таким образом, в настоящей работе измерены константы скоростей ряда процессов, протекающих в активной среде лазера на первой отрицательной системе азота. Полученные значения констант скоростей в основном удовлетворительно согласуются с приведенными в [3, 10]. Заметно отличаются константы скоростей трехчастичных процессов перезарядки He_2^+ на H₂ (процесс 11) и на Kr (процесс 13) от полученных в [4, 5] и измеренных в [10] соответственно.

Спектры люминесценции измерены в Институте ядерной физики Национального ядерного центра Казахстана. Автор благодарен А.С.Заславскому за помощь при проведении измерений.

1. Басов Н.Г., Александров А.Ю., Данилычев В.А. и др. *Письма в ЖЭТФ*, **42**, 39 (1985).
2. Барышева Н.М., Бочков А.В., Бочкова Н.В. и др. *Письма в ЖТФ*, **22**, 83 (1996).
3. Долгих В.А., Рудой И.Г., Самарин А.Ю., Сорока А.М. *Квантовая электроника*, **15**, 1358 (1988).
4. Самарин А.Ю. *Автореф. канд. дис.* (М., ФИАН, 1989).
5. Александров А.Ю., Долгих В.А., Керимов О.М. и др. *Изв. АН СССР. Сер. физич.*, **53**, 1474 (1989).
6. Вирин Л.И., Джагапанян Р.В., Карачевцев Г.В., Потапов В.К., Тальрозе В.Л. *Ионно-молекулярные реакции в газах* (М.: Наука, 1979).
7. Батырбеков Г.А., Сорока А.М., Хасенов М.У. и др. *Препринт ИЯФ АН КазССР № 3-87* (Алма-Ата, 1987).
8. Collins C.B. *IEEE J. Quantum Electron.*, **20**, 47 (1984).
9. Lee F.W., Collins C.B., Waller R.A. *J. Chem. Phys.*, **65**, 1605 (1976).
10. Collins C.B., Lee F.W. *J. Chem. Phys.*, **68**, 1391 (1978).
11. Кузнецова Л.И., Кузьменко Н.Е., Кузяков Ю.Я., Пластинин Ю.А. *Вероятности оптических переходов двухатомных молекул* (М.: Наука, 1980).