

О механизме заселения 3p-уровней неона при накачке жестким ионизатором

М.У.Хасенов

Исследовано влияние тушащих добавок на люминесцентные свойства смесей гелия и неона при накачке α -частицами, испускаемыми атомами ^{210}Po . Сделан вывод о том, что заселение уровня неона $3p^1[1/2]_0$ при возбуждении тяжелой заряженной частицей происходит не в процессе диссоциативной рекомбинации молекулярных ионов. Предполагается, что наиболее вероятным каналом заселения уровня 3p являются передача возбуждения атомам неона от метастабильных атомов гелия и прямое возбуждение неона ядерными частицами и вторичными электронами.

Ключевые слова: лазер, ядерная накачка, неон, механизм заселения, метастабильный атом, каскадные переходы.

Генерация излучения в видимом диапазоне, отсутствие деградации и химической активности рабочей газовой смеси, значительная эффективность – все это вызывает интерес к лазерам высокого давления на 3p–3s-переходах неона с накачкой ионизирующим излучением [1, 2]. Лазер с длиной волны излучения 585 нм обладает низким порогом генерации. В работе [3] теоретически рассмотрена возможность создания лазера при накачке α -частицами смеси He–Ne–H₂. В настоящей работе исследованы зависимости интенсивности линии на $\lambda = 585$ нм от концентрации тушащей добавки (H₂, Ar, Kr, D₂) в смесях He–Ne при возбуждении α -частицами ^{210}Po .

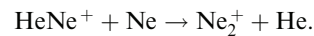
Установка для измерения спектров описана в [4]. В камере из нержавеющей стали находились 18 источников с ^{210}Po . Размеры области возбуждения: диаметр 25 мм, длина 70 мм. Максимальный пробег α -частиц с энергией 5 МэВ в гелии при нормальных условиях составлял 183 мм [5]. Перед установкой источников камера прогревалась и обезгаживалась при давлении в ней $\sim 10^{-5}$ Тор. Сами α -источники после установки в камеру откачивались без прогрева в течение двух-трех недель до получения хорошо воспроизводимых (в пределах 3%–7% интенсивности для разных газов) спектров люминесценции. Давление газов измерялось с помощью образцового мановакуумметра и вакуумметра ВДГ-1, чистота использованных газов: Ne – 99.996%, He – 99.99%, Ar – 99.992%, Kr – 99.999%. Технический водород и дейтерий (обогащение по D₂ – 99%, примеси азота – около 0.1%, кислорода – около 0.05%) очищались при пропускании через силикагель и активную медь. Спектр излучения анализировался с помощью монохроматора SPM-2 с кварцевой призмой и ФЭУ-106, работающего в режиме счета фотонов. Активность α -источников составляла 9.6 Гбк, что при давлении гелия 2 атм соответствует среднему энерговыделению $W \sim 3 \times 10^{-5}$ Вт·см⁻³ и средней по объему газа скорости ионизации $S \sim 4 \times 10^{12}$ см⁻³·с⁻¹.

М.У.Хасенов. ТОО «Фотоника», Казахстан, 050062 Алма-Ата, ул. Утеген батыра, 112; e-mail: khasen@fotonika.kz

Поступила в редакцию 19 октября 2009 г., после доработки – 6 декабря 2010 г.

Измеренные зависимости интенсивности люминесценции на линии с $\lambda = 585$ нм от давления тушащих добавок показаны на рис.1. Были проведены также измерения с добавками технического азота, содержащего $\sim 2\%$ кислорода.

Процессы в активных средах лазеров на 3p–3s-переходах атома Ne считаются хорошо изученными [1]: заселение верхнего лазерного уровня происходит преимущественно за счет диссоциативной рекомбинации молекулярных ионов Ne₂⁺ и HeNe⁺. При относительно слабой накачке ионы HeNe⁺ также образуют ионы Ne₂⁺ в реакции замещения



Полагая, что интенсивность люминесценции на линии с $\lambda = 585$ нм определяется конкуренцией процессов перезарядки ионов Ne₂⁺ на тушащей добавке и рекомбинации электронов с Ne₂⁺, получаем для давления добавки, при котором интенсивность люминесценции уменьшается вдвое, следующее выражение:

$$P = \sqrt{\beta S/k},$$

где k – коэффициент перезарядки Ne₂⁺ на частицах добавки; β – коэффициент рекомбинации Ne₂⁺ с электронами.

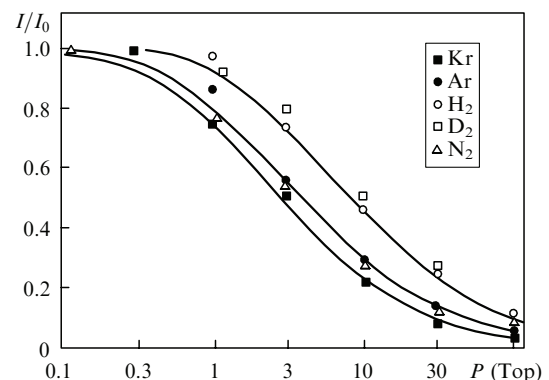


Рис.1. Зависимости интенсивности люминесценции атомов неона на длине волны 585 нм от давления добавок к смеси He (2 атм) + Ne (50 Тор); I_0 – интенсивность люминесценции в смеси без добавок.

Для водорода $k = 1.1 \times 10^{-10} \text{ см}^3 \cdot \text{с}^{-1}$ [6], тогда при «средней» скорости ионизации давление $P \sim 2 \times 10^{-4} \text{ Тор}$, что соответствует концентрации водорода $8 \times 10^{12} \text{ см}^{-3}$. Измеренные значения P составляют 2.8 Тор для Kr, 3.8 Тор для Ar и 8–9 Тор для H_2 и D_2 в смесях с гелием (2 атм) и неоном (50 Тор) (см. рис.1). Заметная интенсивность люминесценции неона в смесях с аргоном или криптоном при их давлении в несколько торр, возможно, связана с малыми коэффициентами перезарядки Ne_2^+ на Ar и Kr [6]. В [1] для согласования расчетной модели с результатами экспериментов по электронно-пучковой и ядерной накачке использовалась константа скорости перезарядки Ne_2^+ на H_2 $k = 1.3 \times 10^{-13} \text{ см}^3 \cdot \text{с}^{-1}$. Такое значение k могло бы частично объяснить результаты, полученные для смесей с водородом (рис.1). Приведенные в литературе значения k для азота составляют 9.1×10^{-10} [6] и $8.6 \times 10^{-10} \text{ см}^3 \cdot \text{с}^{-1}$ [7], спад интенсивности в два раза в смесях, содержащих азот (3.5 Тор), не согласуются с большим значением коэффициента перезарядки.

Возможной причиной эффективной люминесценции на $\lambda = 585 \text{ нм}$ при давлениях тушащей добавки в несколько торр могла быть неоднородная трековая структура образующейся плазмы. Пробег α -частицы с энергией 5 МэВ в гелии при давлении 2 атм равен 9 см, радиус трека ($\sim 5 \times 10^{-4} \text{ см}$) определяется длиной пробега вторичных электронов с энергией $\sim 100 \text{ эВ}$, а объем трековой области составляет $\sim 7 \times 10^{-6} \text{ см}^3$. Энергия образования электрон-ионной пары в гелии равна 45 эВ, при пролете α -частицы образуются 10^5 электронов, а начальная концентрация электронов в треке $n_e \sim 10^{10} \text{ см}^{-3}$. Характерное время рекомбинации электронов с ионами Ne_2^+ при такой концентрации есть $\tau = 1/\beta n_e \sim 10^{-3} \text{ с}$. Время жизни трека, обусловленное амбиполярной диффузией, составляет десятки наносекунд [8]. Время расплывания трека по объему газа намного меньше характерного времени рекомбинации, и слабая зависимость интенсивности люминесценции от давления добавок не связана с трековым характером структуры плазмы. Вид зависимости интенсивности люминесценции от давления криптона при разных давлениях гелия (рис.2) также подтверждает этот вывод. При изменении давления смеси с 1 до 6 атм начальная концентрация электронов в треке возрастает в 200 раз, а давление криптона, при котором интенсивность люминесценции спадает вдвое, увеличивается всего в три раза, что может объясняться сильным тушением

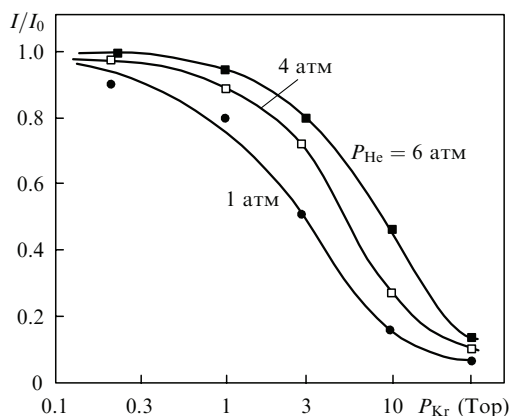
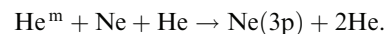


Рис.2. Зависимости интенсивности люминесценции атомов неона от давления криптона в смеси He + Ne (40 Тор) + Kr при давлениях гелия 1, 4 и 6 атм.

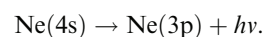
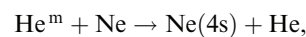
$3p'[1/2]_0$ -состояния неона атомами Ne при больших давлениях гелия.

По-видимому, заселение уровня $3p'[1/2]_0$ атома неона при возбуждении тяжелой частицей происходит не в процессе диссоциативной рекомбинации молекулярных ионов. Для сравнения: при ядерной накачке ртутьсодержащих смесей заселение уровней Hg I происходит в процессе диссоциативной рекомбинации ионов Hg_2^+ [9]. Добавление кислорода (0.1 Тор) к смеси ${}^3\text{He} + \text{Hg}$ приводит к уменьшению интенсивностей линий триплетта и резонансной линии ртути примерно в 500 раз [10], что связано с прилипанием электронов к молекулам O_2 . Конкурирующий с перезарядкой на атомах ртути процесс перезарядки Ne_2^+ на O_2 , по-видимому, в данном случае несуществен, поскольку ионы O_2^+ также будут перезарядаться на атомах Hg. Добавление к смеси He (2 атм) + Ne (50 Тор) технического азота (до 50 Тор) с примесью кислорода ($\sim 2\%$) привело к такому же спаду интенсивности люминесценции, как и добавление чистых Ar и Kr, т.е. процессы прилипания электронов к электроотрицательной примеси не влияют на заселение уровня неона $3p'[1/2]_0$.

В работе [11] на основании исследования спектрально-временных характеристик люминесценции чистого неона с накачкой тяжелыми заряженными частицами был сделан вывод о заселении уровней неона прямым возбуждением ядерными частицами и вторичными дельта-электронами, а в случае He–Ne-смесей – в процессах передачи возбуждения от метастабилей гелия:



Более вероятным каналом заселения уровней 3p неона в его смеси с гелием являются, на наш взгляд, каскадные переходы с уровней 4s:



Известно, что энергии уровней Ne (4s) и He (2^3S_1) близки – на передаче возбуждения атомам неона от He (2^3S_1) основана работа гелий-неонового лазера, излучающего на $\lambda = 1.15 \text{ мкм}$. Отсутствие линий переходов 4s–3p в смеси высокого давления [11] связано с тем, что эти переходы лежат в ИК области спектра за пределами чувствительности ФЭУ. В работе [12], где спектры регистрировались до длины волны 1100 нм, при возбуждении неона и смеси He–Ne осколками деления урана наблюдалась линия 966.5 нм, соответствующая переходу $4s[3/2]_2 - 3p[1/2]_1$. Кроме того, в [12] идентифицировано более 10 линий 3d–3p-переходов с общей мощностью излучения с 1 см^3 объема активной среды около 32 мВт в неоне (64 кПа) и 7 мВт в смеси He:Ne = 179:1 (180 кПа). В результате этих переходов в основном заселяются три наиболее низколежащих уровня 3p. Мощность излучения на переходе $3p[1/2]_1 - 3s'[1/2]_0$ (743.9 нм) составляет 5 мВт в неоне и 2.8 мВт в смеси He–Ne. Отсюда, зная время жизни уровня (25.4 нс) и вероятность данного перехода ($2.4 \times 10^6 \text{ с}^{-1}$) [13], можно определить общую мощность излучения с уровня $3p[1/2]_1$, составляющую 82 мВт в неоне и 46 мВт в смеси He–Ne. Известно, что интенсивность излучения с уровня $3p[1/2]_1$ равна около 50% общей интенсивности излучения на переходах 3p–3s [14], таким образом, переходы 3d–3p обеспечивают $\sim 20\%$ интенсивности излучения на переходах 3p–3s в

неоне и $\sim 7\%$ в смеси He–Ne. Возможно присутствие в спектре излучения и на других, не отмеченных в [12], переходах 3d–3p, т. к. их длинноволновая граница простирается до 1169 нм [13].

Заселению уровней 3p в результате рекомбинации Ne_2^+ могла препятствовать перезарядка Ne_2^+ на примеси уже в смеси He–Ne без добавок. В табл.1 приведены результаты измерений, которые позволяют оценить такую возможность. Интенсивность люминесценции на длине волны 585 нм в смеси с ^3He высокой чистоты (содержание азота, водорода, углеводородов менее 0.0001 %) не отличалась от интенсивности в смеси с гелием марки Б. Приведены также интенсивности I для других смесей, скорректированные на спектральную чувствительность установки и величину энерговклада в газ I^* . Для линии триплета ртути с $\lambda = 546$ нм коэффициент ветвления равен 0.53 [13], а селективность накачки уровня 7^3S_1 составляет ~ 0.8 [9]. Селективность возбуждения состояния $\text{V}^2\Sigma_u^+$ в смеси He– N_2 равна ~ 0.75 [15]. Сравнивая интенсивности люминесценции в этих смесях и учитывая, что интенсивность излучения на $\lambda = 585$ нм составляет 15 %–20 % от интенсивности всех линий переходов 3p–3s неона [1], можно сделать вывод о том, что основными, возможно явно преобладающими, каналами заселения уровней неона 3p при накачке жестким ионизатором являются процессы, не связанные с диссоциативной рекомбинацией молекулярных ионов.

Изменения интенсивности люминесценции на $\lambda = 585$ нм связаны не только с тушением уровня $3p'[1/2]_0$ добавками (константа скорости тушения составляет $4.6 \times 10^{-11} \text{ см}^3 \cdot \text{с}^{-1}$ для H_2 и $5.3 \times 10^{-11} \text{ см}^3 \cdot \text{с}^{-1}$ для Ar [16]). Учитывая время жизни уровня (14.3 нс [13]), получаем давление H_2 или Ar, при котором скорость тушения становится равной скорости спонтанного распада уровня (~ 40 Тор). По-видимому, спад интенсивности люминесценции с ростом парциального давления тушащей добавки связан, в основном, с процессом Пеннинга (ионизацией атомов добавки при столкновениях с метастабильными гелия, табл.2).

Считая, что интенсивность люминесценции неона на $\lambda = 585$ нм в смеси He–Ne (50 Тор) с добавками H_2 , Ar, Kr или N_2 определяется конкуренцией процесса нерезонансной передачи возбуждения He (2^3S_1) атомам неона и процесса Пеннинга, можно оценить давление тушащей добавки, при котором интенсивность падает в два раза. Удовлетворительное согласие оценочных и измеренных значений P позволяет сделать вывод, что при ионизи-

Табл.1. Интенсивность люминесценции газовых смесей при их возбуждении α -частицами.

Состав смеси	I (отн. ед.)	λ (нм)	Активность I^* (ГБк)	(отн. ед.)
^4He (2 атм) + Ne (50 Тор)	5.69	585	9.6	5.69
^3He (2 атм) + Ne (50 Тор)	5.72	585	9.6	5.72
^3He (2 атм) + Hg (1.5 мТор)	15.7	546	16	8.4
He (1 атм) + Hg (1.5 мТор)	79	546	22	13.2
He (4 атм) + N_2 (0.3 Тор)	20.6	391	5.4	13.7
	6.0	427		4.0
He (1 атм) + Ne (1 атм)	7.2	585		4.6
	3.7	703	9.6	(2.4)
Ne (1.3 атм) + Ar (50 Тор)	3.1	585	6.8	2.5
Ne (3 атм) + Ar (50 Тор)	4.3	585	6.8	2.4
	1.5	703		(0.8)

Табл.2. Параметры процессов тушения атомов He (2^3S_1).

Атом, молекула	Процесс	k ($10^{-11} \text{ см}^3 \cdot \text{с}^{-1}$)		P (Тор)	
		[17]	[18]	оценка	эксперимент
Ne	He(2^3S_1) + Ne \rightarrow Ne(4s) + He	0.45	0.36		
H_2	Пеннинга	5 ± 3	2.9	~ 7	8
D_2	Пеннинга		2.6	~ 8	9
Ar	Пеннинга	9 ± 5	7.1	~ 3	3.8
Kr	Пеннинга	11		~ 2	2.8
N_2	Пеннинга	7.2 ± 1.4	7.1	~ 3	3.5

рующей накачке смесями He–Ne с большим содержанием гелия заселение уровней 3p происходит в результате передачи возбуждения атомов He (2^3S_1) атомам неона и последующих каскадных переходов 4s–3p.

Добавление аргона (50 Тор) к неону вызывает снижение интенсивности люминесценции в два раза на $\lambda = 585$ нм и в три раза на $\lambda = 703$ нм (данные для $\lambda = 703$ нм приведены в табл.1 без поправки на спектральную чувствительность регистрирующей системы), что примерно соответствует тушению аргоном уровней 3p. Интенсивное излучение на переходах 3p–3s при возбуждении неона α -частицами [14] и осколками спонтанного деления ^{252}Cf ($W \sim 10^{-8} \text{ Вт} \cdot \text{см}^{-3}$) [11] позволяет сделать вывод о том, что и в чистом неоне заселение уровней 3p происходит в процессах, не связанных с диссоциативной рекомбинацией ионов Ne_2^+ . При накачке осколками деления урана [19, 20] интенсивность люминесценции смеси Ne (0.64 атм) + NF_3 (1.5 Тор) примерно равна интенсивности излучения на переходах 3p–3s в неоне с добавкой Ar, Kr или Xe (8 Тор). Наличие электроотрицательной примеси в неоне, так же как и для смеси He–Ne, не приводит к резкому спаду интенсивности излучения на переходах 3p–3s.

Таким образом, результаты работы показывают, что схема возбуждения переходов неона 3p–3s в процессах диссоциативной рекомбинации молекулярных ионов неона не согласуется с экспериментальными данными, полученными при слабой накачке ионизирующим излучением:

– эффективная люминесценция наблюдается при добавлении в исследуемые смеси тушащих добавок с давлением в несколько торр (при рекомбинационном механизме заселения уровней интенсивность излучения при $W \sim 3 \times 10^{-5} \text{ Вт} \cdot \text{см}^{-3}$ резко снизилась бы при давлении H_2 (N_2) $\sim 10^{-4} - 10^{-3}$ Тор);

– процессы прилипания электронов к электроотрицательной примеси не влияют на заселение уровня неона $3p'[1/2]_0$.

Наиболее вероятным каналом заселения уровня неона 3p предполагается передача возбуждения атомам неона от метастабильных атомов гелия и прямое возбуждение неона ядерными частицами и вторичными электронами (рис.3). В неоне вторичными электронами возбуждаются уровни 3d, 4s и 5s, в каскадных переходах с этих уровней происходит заселение уровней 3p. Уровни 3d, 4s и 5s, радиационно-связанные с основным состоянием, должны эффективно возбуждаться электронным ударом. Отсутствие линий переходов с уровней 5s в [11, 14] объясняется тем, что вероятности переходов 5s–3p намного меньше вероятностей переходов 5s–4p в ИК области спектра. Каскадные переходы 5s–4p, 4p–4s, 4s–3p также могут внести вклад в заселение уровней неона 3p. В

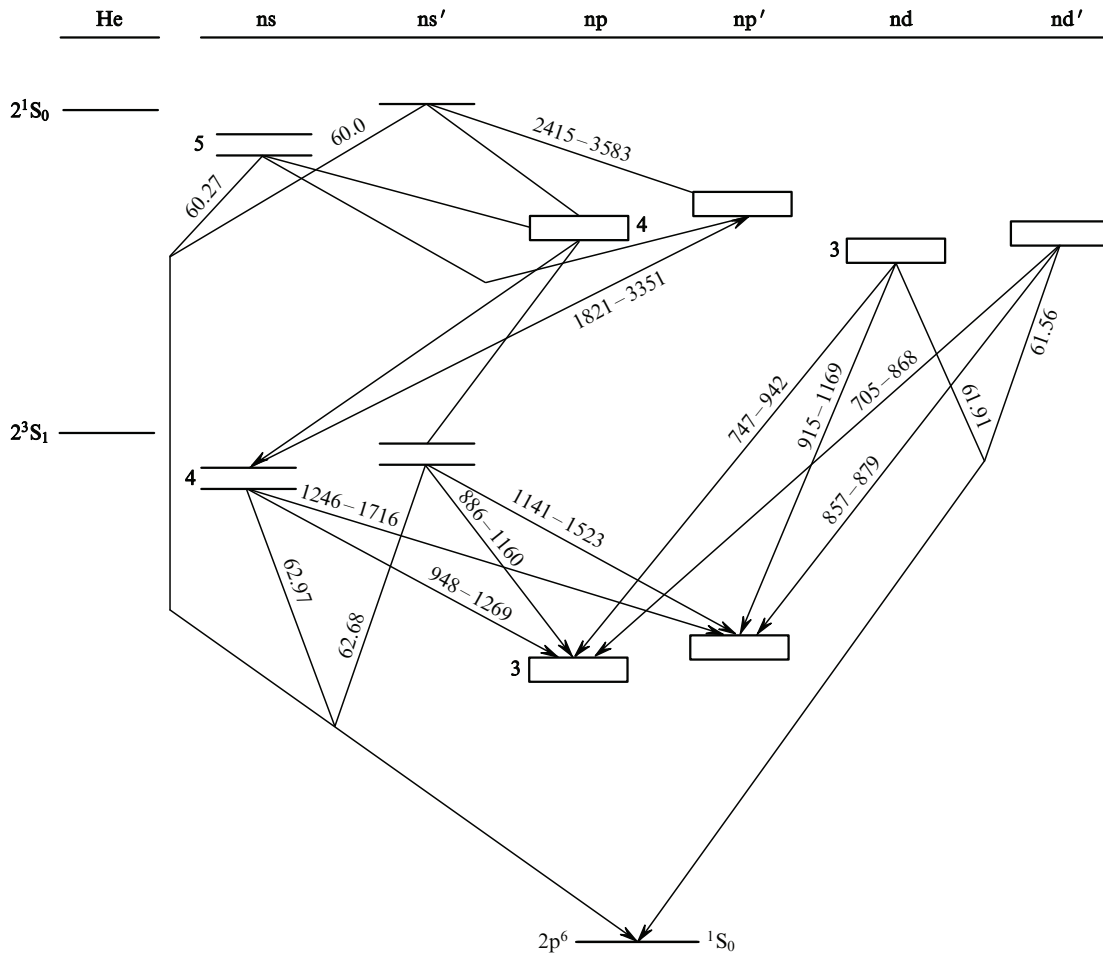


Рис.3. Схема заселения уровней неона 3p (длины волн переходов даны в нанометрах).

гелий-неоновых смесях заселение уровней 3p происходит также в процессах нерезонансной передачи возбуждения метастабильных атомов He (2³S₁) и He (2¹S₀) на уровни неона 4s и 5s и последующих каскадных переходов.

- Карелин А.В., Яковленко С.И. *Квантовая электроника*, **22**, 769 (1995).
- Мельников С.П., Сизов А.Н., Синянский А.А. *Лазеры с ядерной накачкой* (Саров: ФГУП «РФЯЦ-ВНИИЭФ», 2008).
- Shaban Y. R., Campos T.P.R. *Brazilian J. Phys.*, **27**, 129 (1997).
- Khasenov M.U. *Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng.*, **6263**, 141 (2006).
- Немец О.Ф., Гофман Ю.В. *Справочник по ядерной физике* (Киев: Наукова думка, 1975).
- Вирин Л.И., Джагапанян Р.В., Карачевцев Г.В., Потапов В.К., Тальрозе В.Л. *Ионно-молекулярные реакции в газах* (М.: Наука, 1979).
- Collins C.W., Lee F.W. *J. Chem. Phys.*, **72**, 5381 (1980).
- Будник А.П., Добровольская И.В. *Квантовая электроника*, **24**, 506 (1997).
- Батырбеков Г.А., Сорока А.М., Хасенов М.У. и др. *ЖПС*, **49**, 770 (1988).
- Smirnova I.I., Khasenov M.U. *Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng.*, **6938**, 0J (2008).
- Полетаев Е.Д., Дорофеев Ю.Б., Дьяченко П.П. и др. *ЖТФ*, **62**, 1 (1992).
- Abramov A.A., Gorbunov V.V., Melnikov S.P., et al. *Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng.*, **6263**, 121 (2006).
- Радциг А.А., Смирнов Б.М. *Параметры атомов и атомных ионов* (М.: Энергоатомиздат, 1986).
- Батырбеков Г.А., Батырбеков Э.Г., Данилычев В.А., Хасенов М.У. *Оптика и спектроскопия*, **68**, 1241 (1990).
- Collins C. *IEEE J. Quantum Electron.*, **20**, 47 (1984).
- Бурштейн М.Л., Комаровский В.А., Федоров А.Н., Юргенсон С.В. *Оптика и спектроскопия*, **71**, 240 (1991).
- Смирнов Б.М. *Возбужденные атомы* (М.: Энергоиздат, 1982).
- Lindiger W., Schmeltekopf A.L., Fehsenfeld F.C. *J. Chem. Phys.*, **61**, 2890 (1974).
- Горбунов В.В., Григорьев В.Д., Довбыш Л.Е. и др. *Труды РФЯЦ-ВНИИЭФ*, вып. 6, 148 (2004).
- Горбунов В.В., Григорьев В.Д., Довбыш Л.Е. и др. *Труды РФЯЦ-ВНИИЭФ*, вып. 6, 174 (2004).