УДК 535.37:621.373.8

ИЗЛУЧЕНИЕ СМЕСЕЙ He-Ne-H₂ (Ar, Kr) ПРИ СЛАБОЙ НАКАЧКЕ ЖЕСТКИМ ИОНИЗАТОРОМ

М.У. Хасенов

TOO «Фотоника», г. Алматы, Казахстан E-mail: nauka l@nursat.kz

Исследовано влияние тушащих добавок на люминесцентные свойства смесей гелия и неона при накачке α-частицами ²⁰Po. Сделан вывод о том, что заселение 3p'[1/2]₀-уровня Nel при возбуждении тяжелой заряженной частицей происходит не в процессе диссоциативной рекомбинации молекулярных ионов. Наиболее вероятным каналом заселения Ne(3p) предполагается передача возбуждения атомам неона от метастабильных атомов гелия He (2³S₁) и прямое возбуждение неона ядерными частицами и вторичными электронами.

Ключевые слова:

Лазер, ядерная накачка, неон, механизм заселения, метастабильный атом, каскадные переходы.

Key words:

Laser, nuclear pumping, neon, mechanism of populating, metastable atom, cascade transitions.

Генерация излучения в видимом диапазоне, отсутствие деградации и химической активности рабочей газовой смеси, значительный КПД привлекают интерес к лазеру высокого давления на 3р-3sпереходах неона с накачкой ионизирующим излучением [1, 2]. Лазер на λ =585 нм обладает низким порогом генерации, в [3] теоретически рассмотрена возможность создания лазера при накачке смеси Не-Ne-H₂ α -частицами. В настоящей работе исследованы зависимости интенсивности линии 585 нм от концентрации тушащей добавки в смесях Не-Ne-H₂(Ar, Kr, D₂) при возбуждении α -частицами ²¹⁰Po.

Установка для измерения спектров описана в [4]. В камере из нержавеющей стали располагались 18 источников с ²¹⁰Ро. Размер области возбуждения \emptyset 25×70 мм, максимальный пробег α -частиц с энергией 5 МэВ в газе при нормальных условиях составляет [5]: в He – 183, Ne – 56, Ar – 37, Kr – 28, H₂ − 138 мм. Перед установкой источников камера прогревалась и обезгаживалась при давлении ~10⁻³ Па. Сами *α*-источники после установки откачивались без прогрева в течение 2...3 недель до получения хорошо воспроизводимых (до 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 ~0,1 %, кислорода ~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 соответствует среднему энерговкладу в 2 атм гелия ~3·10⁻⁵ Втсм⁻³ и «средней» по объему газа скорости ионизации $S \sim 4 \cdot 10^{12} \text{ см}^{-3} \text{с}^{-1}$.

Измеренные зависимости интенсивности люминесценции на линии 585 нм от давления тушащих добавок (Kr, Ar, H₂, D₂) показаны на рис. 1. Были проведены также измерения с добавками технического азота, содержавшего ~2 % кислорода, экспериментальные точки (на рис. 1 не показаны) лежат между кривыми для Ar и Kr.

Процессы в активных средах лазеров на 3p-3sпереходах NeI считаются хорошо изученными [1]: заселение верхнего лазерного уровня происходит преимущественно за счет диссоциативной рекомбинации молекулярных ионов Ne_2^+ и HeNe⁺. При относительно слабой накачке ионы HeNe⁺ также образуют ионы Ne_2^+ в реакциях замещения:



Рис. 1. Зависимость интенсивности люминесценции от давления добавок к смеси Не (2 атм) + Ne (6,7 кПа). I₀ – интенсивность в смеси без добавок

Принимая, что зависимость интенсивности люминесценции на линии 585 нм определяется конкуренцией процессов перезарядки ионов Ne_2^+ на тушащей добавке и рекомбинации электронов с Ne_2^+ , получим для концентрации добавки, при которой интенсивность падает вдвое:

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

где k – коэффициент перезарядки Ne₂⁺ на примеси, β – коэффициент рекомбинации Ne₂⁺.

Для водорода $k=1,1\cdot10^{-10}$ см³с⁻¹ [6], тогда при «средней» скорости ионизации P~8·10¹² см⁻³~3·10⁻² Па. Из-

меренные значения *P* соответствуют 370 Па для Kr, 505 Па для Ar и 1070 Па для H₂, D₂ в смеси с 2 атм гелия и 6,7 кПа неона (см. рис. 1). Коэффициенты перезарядки для Ar, Kr малы [6], для H₂ значение из [6] предполагается сильно завышенным [1], что может объяснить более медленный спад интенсивности. Измеренное для сравнения значение *P* для технического азота составило 465 Па, приведенные в литературе значения *k* для азота – 9,1·10⁻¹⁰ см³с⁻¹ [6] и 8,6·10⁻¹⁰ см³с⁻¹ [7]. Зависимость интенсивности люминесценции на λ =703 нм от давления добавок H₂ или Kr аналогична зависимости для 585 нм (рис. 2).

Возможная причина эффективной люминесценции на 585 нм при давлениях тушащей добавки в несколько сотен Па могла быть связана с неоднородной трековой структурой образующейся плазмы. Пробег α-частицы с энергией 5 МэВ в гелии при давлении 2 атм составляет 9 см, радиус трека определяется длиной пробега вторичных электронов с энергией около 100 эВ - ~5·10⁻⁴ см, объем трековой области составляет ~7·10⁻⁶ см³. Энергия образования электрон-ионной пары в гелии 45 эВ, при пролете α -частицы образуется 10⁵ электронов, начальная плотность электронов в треке α-частицы $n_{e} \sim 10^{10}$ см⁻³. Характерное время рекомбинации электронов с ионами Ne2+ при такой плотности $\tau = 1/\beta n_{*} \sim 2 \cdot 10^{-3}$ с. Время жизни трека, обусловленное амбиполярной диффузией, составляет десятки нс [8]. Трек расплывется по объему газа намного раньше характерного времени рекомбинации, слабая зависимость интенсивности люминесценции от давления добавок не связана, по-видимому, с трековым характером плазмы.



Рис. 2. Зависимость интенсивности люминесценции на 703 нм (кривые 1, 3) и 585 нм (кривые 2, 4) от давления водорода в смеси Не + Ne (5,3 кПа) + Н₂ при давлении гелия 1 атм (кривые 1, 2) и 2 атм (кривые 3, 4)

Характер зависимости интенсивности люминесценции от давления криптона при разных давлениях гелия (рис. 3) также подтверждает этот вывод. При изменении давления смеси с 1 до 6 атм начальная плотность электронов в треке возрастает в 200 раз, давление криптона, при котором люминесценция спадает вдвое, увеличивается всего в 3 раза, (что может объясняться большим тушением 3р'[1/2]₀-состояния неона атомами Не с увеличением давления гелия).



Рис. 3. Зависимость интенсивности люминесценции от давления криптона в смеси He + Ne (5,3 кПа) + Kr при давлении гелия 1 (кривая 1), 4 (кривая 2) и 6 атм (кривая 3)

По-видимому, заселение 3p'[1/2]₀-уровня NeI при возбуждении тяжелой частицей происходит не в процессе диссоциативной рекомбинации молекулярных ионов. При ядерной накачке ртутьсодержащих смесей заселение уровней HgI происходит в процессе диссоциативной рекомбинации ионов Нд⁺ [9]. Добавление 13 Па кислорода к смеси ³He+Hg приводит к ослаблению линий триплета и резонансной линии ртути в ~500 раз [10], что связано с прилипанием электронов к О2. Конкурирующий с перезарядкой на атомах ртути процесс перезарядки He₂⁺ на O₂, по-видимому, в данном случае несуществен, т. к. ионы О2+ будут также перезаряжаться на атомах Hg. Добавление к смеси He (2 атм) + Ne (6,7 кПа) до 6,7 кПа технического азота с примесью ~2 % O_2 привело к такому же спаду интенсивности, как и для чистых Ar и Kr, т. е. процессы прилипания электронов к электроотрицательной примеси не влияют на заселение 3р [1/2] уровня неона.

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

$He^{m}+Ne+He \rightarrow Ne(3p)+2He$

Возможным каналом заселения на наш взгляд также являются каскадные переходы с уровней 4s:

$$He^{m}+Ne \rightarrow Ne(4s)+He$$

$Ne(4s) \rightarrow Ne(3p) + hv$

Известно, что уровни Ne(4s) близки к уровню He $(2^{3}S_{1})$, на передаче возбуждения атомам неона от He $(2^{3}S_{1})$ основана работа гелий-неонового лазера на 1,15 мкм. В работе [12], где измерения проводились до 1100 нм, при возбуждении неона и Не-Ne смеси осколками деления урана, в спектре присутствует линия 966,5 нм, соответствующая переходу 4s[3/2]₂-3p[1/2]₁. Кроме того, в [12] идентифицированы более 10 линий 3d-3p переходов с общей мощностью излучения около 32 мВт в неоне (64 кПа) и 7 мВт в смеси He:Ne=179:1 (180 кПа). В этих переходах в основном заселяются 3 наиболее низко лежащих 3р-уровня. На переходе 3p[1/2]₁-3s [1/2]₀ (743,9 нм) излучается 5 мВт в неоне и 2,8 мВт в Не-Ne смеси. Тогда, зная [13] время жизни уровня (25,4 нс) и вероятность данного перехода (2,4·10⁶ с⁻¹), можно определить общую мощность излучения с $3p[1/2]_1$ -уровня: 82 мВт в неоне и 46 мВт в Не-Ne смеси. Известно, что интенсивность излучения с 3р[1/2],-уровня составляет около 50 % общей интенсивности 3р-3s переходов [14], таким образом, 3d-3p переходы обеспечивают ~20 % интенсивности 3p-3s переходов в неоне и ~7 % в Не-Ne смеси. Возможно присутствие в спектре и других, не отмеченных в [12], 3d-3p переходов, т. к. длинноволновая граница 3d-3p переходов простирается до 1169 нм [13].

Результаты настоящей работы подтверждают основной вывод [11] — при накачке смесей с неоном тяжелыми заряженными частицами преобладающий механизм заселения 3р-уровней неона не связан с диссоциативной рекомбинацией Ne₂⁺.

Таблица 1. Интенсивность люминесценции газовых смесей при возбуждении α-частицами

Состав смеси	/ отн. ед.; λ, нм	Актив- ность, ГБк	/*, отн. ед.
^₄ Не (2 атм) + Ne (6,7 кПа)	5,69; 585	9,6	5,69
³ Не (2 атм) + Ne (6,7 кПа)	5,72; 585	9,6	5,72
³ Не (2 атм) + Нg (0,2 Па)	15,7; 546	16	8,4
Хе (1 атм) + Нд (0,2 Па)	79; 546	22	13,2
Не (4 атм) + N ₂ (40 Па)	20,6; 391 6,0; 427	5,4	13,7 4,0
Не (1 атм) + Ne (1 атм)	7,2; 585 3,7; 703	9,6	4,6 (2,4)
Ne (1,3 атм) + Ar (6,7 кПа)	3,1; 585	6,8	2,5
Ne (3 атм) + Ar (6,7 кПа)	4,3; 585 1,5; 703	6,8	2,4 (0,8)

Заселение Зр-уровней в результате рекомбинации Ne_2^+ могло экранироваться перезарядкой Ne_2^+ на примеси уже в смеси Не-Ne без добавок. В табл. 1 приводятся результаты измерений, которые позволяют оценить такую возможность. Интенсивность люминесценции на 585 нм в смеси с ³Не высокой чистоты (содержание азота, водорода, углеводородов менее чем по 0,0001 %) не отличалась от интенсивности в смеси с гелием марки «Б». Приводятся также интенсивности І для других смесей, скорректированные на спектральную чувствительность установки и величину энерговклада в газ *I*^{*}. Для линии триплета ртути 546 нм коэффициент ветвления равен 0,53 [13], селективность накачки уровня 7³S₁ ~0,8 [9]. Селективность возбуждения состояния $B^{2}\Sigma_{u}^{+}$ в смеси He-N₂ – 0,75 [15]. Сравнивая интенсивности этих смесей с высокой эффективностью люминесценции и учитывая, что доля излучения на 585 нм составляет 15...20 % от интенсивности всех линий 3p-3s переходов неона [1], можно сделать вывод о том, что основными каналами заселения 3p-уровней неона при накачке жестким ионизатором являются процессы передачи возбуждения от метастабильных состояний гелия и прямого возбуждения неона.

Изменения интенсивности на 585 нм связаны не только с тушением $3p'[1/2]_0$ -уровня добавками, константа скорости тушения составляет $4,6\cdot10^{-11}$ см³с⁻¹ для H_2 и $5,3\cdot10^{-11}$ см³с⁻¹ для Ar [16]. Учитывая время жизни уровня — 14,3 нс [13], получим значение давления H_2 или Ar, при котором скорость тушения сравнивается со скоростью спонтанного распада уровня (≈ 5 кПа). По-видимому, спад интенсивности люминесценции с ростом парциального давления тушащей добавки связан, в основном, с процессом Пеннинга метастабилей гелия на добавке (табл. 2).

Таблица 2. Процессы тушения Не (2³S₁)

Атом,		<i>К</i> , 10 ⁻¹¹ см ³ с ⁻¹		<i>Р</i> , Па	
моле-	Процесс	[17]	[10]	Ополка	Экспери-
кула		[1/]	[10]	оценка	мент
Ne	$He(2^{3}S_{1})+Ne \rightarrow Ne(4s)+He$	0,4	0,4	-	-
H ₂	Пеннинга	5±3	3	~900	1070
Ar	Пеннинга	9±5	7	~400	505
Kr	Пеннинга	11		~300	370
N ₂	Пеннинга	7,2±1,4	7	~400	465

Считая, что зависимость интенсивности на 585 нм определяется конкуренцией процесса нерезонансной передачи возбуждения с Не $(2^{3}S_{1})$ на неон и процесса Пеннинга на тушащей добавке, можно оценить величину давления тушащей добавки, при которой интенсивность спадает в два раза. Удовлетворительное согласие оценочных и измеренных значений *P* позволяет сделать вывод о том, что при ионизирующей накачке He-Ne смесей (с большим содержанием гелия) заселение 3р-уровней происходит в результате передачи возбуждения от He $(2^{3}S_{1})$ на неон и последующих каскадных 4s-3p переходах.

Исследования с безгелиевыми смесями не проводились, отдельные результаты представлены в табл. 1. Добавление 6,7 кПа аргона к неону приводит к снижению интенсивности в 2 раза на λ =585 нм и 3 раза на 703 нм (данные для 703 нм приводятся в таблице без поправки на спектральную чувствительность), что примерно соответствует тушению 3р-уровней аргоном.

Выводы

Получены результаты, показывающие, что схема возбуждения 3p-3s-переходов неона в процессах диссоциативной рекомбинации молекулярных ионов неона не согласуется с экспериментальными данными при слабой накачке ионизирующим излучением:

- эффективная люминесценция наблюдается при добавлении тушащих добавок в несколько сотен Па, при рекомбинационном механизме заселения уровней интенсивность излучения резко снизилась бы уже при давлении примесей 10⁻²...10⁻¹ Па;
- процессы прилипания электронов к электроотрицательной примеси не влияют на заселение 3p [1/2]₀-уровня неона.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Карелин А.В., Яковленко С.И. Кинетическая модель Не-Ne-Ar-H₂-лазера с накачкой жестким ионизатором // Квантовая электроника. – 1995. – Т. 22. – № 8. – С. 769–775.
- Мельников С.П., Сизов А.Н., Синянский А.А. Лазеры с ядерной накачкой. – Саров: ФГУП «РФЯЦ-ВНИИЭФ», 2008. – 440 с.
- Shaban Y.R., Campos T.P.R. A Proposed Continuous Wave 585.4 nm ⁴He/Ne/H₂ Gas Laser Mixture Pumped by α-emitter Radioisotope // Brazilian J. of Physics. – 1997. – V. 27. – № 2. – P. 129–134.
- Khasenov M.U. Emission of the heteronuclear ionic molecules (Ar-Xe)⁺ at excitation by hard ionizer // Proc. of SPIE. – 2006. – V. 6263. – P. 141–148.
- Немец О. Ф., Гофман Ю. В. Справочник по ядерной физике. Киев: Наукова думка, 1975. – 415 с.
- Вирин Л.И., Джагацпанян Р.В., Карачевцев Г.В., Потапов В.К., Тальрозе В.Л. Ионно-молекулярные реакции в газах. – М.: Наука, 1979. – 548 с.
- Collins C.B., Lee F.W. Measurement of the rate coefficients for the bimolecular and termolecular ion-molecule reactions of Ne₂⁺ with selected atomic and molecular species // J. Chem. Phys. – 1980. – V.72. – № 10. – P. 5381–5389.
- Будник А.П., Добровольская И.В. Особенности кинетики активных сред лазеров, возбуждаемых осколками деления // Квантовая электроника. – 1997. – Т. 24. – № 6. – С. 506–510.
- Батырбеков Г.А., Батырбеков Э.Г., Долгих В.А., Рудой И.Г., Сорока А.М., Тлеужанов А.Б., Хасенов М.У. Люминесценция смесей ртути и инертных газов с молекулярными добавками при возбуждении ионизирующим излучением // Журнал прикладной спектроскопии. 1988. Т. 49. № 5. С. 770–774.
- Smirnova I.I., Khasenov M.U. Possible use of ion-ion recombination in nuclear pumped laser // Proc. of SPIE. – 2008. – V. 6938. – P. 102–106.

Наиболее вероятным каналом заселения Ne(3p) предполагается передача возбуждения атомам неона от метастабильных атомов гелия He (2³S₁) и прямое возбуждение неона ядерными частицами и вторичными электронами.

Заселение уровней NeI в процессах, не связанных с диссоциативной электрон-ионной рекомбинацией, приводит к существенно меньшей зависимости интенсивности люминесценции неона от давления примесей, что может быть полезным для создания радионуклидных источников оптического излучения.

- Полетаев Е.Д., Дорофеев Ю.Б., Дьяченко П.П., Копай Гора А.П., Мавлютов А.А., Миськевич А.И., Саламаха Б.С. Излучательные характеристики чистого неона и Не-Ne смесей высокого давления при возбуждении ядерными частицами // Журнал технической физики. 1992. Т. 62. № 2. С. 1–8.
- Abramov A.A., Gorbunov V.V., Melnikov S.P., Mukhamatullin A.Kh., Pikulev A.A., Sinitsyn A.V., Sinyanskii A.A., Tsvetkov V.M. Luminescence of nuclear induced rare-gas plasmas in near infrared spectral range // Proc. of SPIE. – 2006. – V. 6263. – P. 121–128.
- Радциг А.А., Смирнов Б. М. Параметры атомов и атомных ионов. – М.: Энергоатомиздат, 1986. – 344 с.
- Батырбеков Г.А., Батырбеков Э.Г., Данилычев В.А., Хасенов М.У. Эффективность заселения 3р-уровней неона при возбуждении жестким ионизатором // Оптика и спектроскопия. 1990. – Т. 68. – В. 6. – С. 1241–1245.
- Collins C. The nitrogen ion laser pumped by charge transfer // IEEE J. of Quantum Electronics. – 1984. – V. 20. – № 1. – P. 47–63.
- Бурштейн М.Л., Комаровский В.А., Федоров А.Н., Юргенсон С.В. Исследование тушения возбужденных 2р-уровней неона молекулярным водородом и атомами аргона // Оптика и спектроскопия. – 1991. – Т. 71. – В. 2. – С. 240–242.
- Смирнов Б.М. Возбужденные атомы. М.: Энергоиздат, 1982. – 232 с.
- Lindiger W., Schmeltekopf A.L., Fehsenfeld F.C. Temperature dependence of de-excitation rate constants of He(2³S) by Ne, Ar, Xe, H₂, N₂, O₂, NH₃ and CO₂ // J. Chem. Phys. 1974. V. 61. № 6. P. 2890–2895.

Поступила 21.10.2010 г.