

Го Цзиньбо

ХАРАКТЕРИСТИКИ ЭКСИМЕРНЫХ СРЕД НА ОСНОВЕ
МОЛЕКУЛ XeCl^* И Xe_2Cl^* С НИЗКИМ СОДЕРЖАНИЕМ
ДОНОРА CCl_4 ПРИ ВОЗБУЖДЕНИИ ЗАРЯЖЕННЫМИ
ЧАСТИЦАМИ ВЫСОКОЙ ЭНЕРГИИ

01.04.21 – Лазерная физика

Автореферат

диссертации на соискание ученой степени кандидата
физико-математических наук

Автор:

Го Цзиньбо

Москва – 2013

Работа выполнена в Федеральном государственном автономном образовательном учреждении высшего профессионального образования «Национальный исследовательский ядерный университет «МИФИ»

Научный руководитель: доктор физико-математических наук
Миськевич Алексей Иустинovich

Официальные оппоненты: Суворов Алексей Анатольевич,
доктор физико-математических наук,
начальник отдела ядерно-лазерных и
термоядерных исследований ГНЦ
РФ, «Физико-энергетический
институт им. А.И. Лейпунского»

Розанов Владислав Борисович,
доктор физико-математических наук,
гл. научный сотрудник, зав.сектором
«Теория лазерной плазмы»,
«Физический институт им. П. Н.
Лебедева»

Ведущая организация: Российский федеральный ядерный центр -
Всероссийский научно-исследовательский институт технической физики
(РФЯЦ-ВНИИТФ).

Защита состоится « 19 » июня 2013г в 15 час 00 мин на заседании
диссертационного совета Д 212.130.05 в Федеральном государственном
автономном образовательном учреждении высшего профессионального
образования «Национальный исследовательский ядерный университет «МИФИ»
по адресу: 115409, Москва, Каширское шоссе, 31, корпус К, конференц-зал
(комн.608), тел. (499)323-91-67 , (499)324- 88-98

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке НИЯУ МИФИ

Автореферат разослан « 11 » мая 2013г

Просим принять участие в работе совета или прислать отзыв в двух
экземплярах, заверенный печатью организации.

Ученый секретарь
диссертационного совета



Р.С. Стариков

Общая характеристика работы

Актуальность работы

Прямое преобразование энергии ядерных частиц открывает новые возможности в деле получения больших количеств световой энергии, в том числе и наиболее совершенной её формы - когерентного света. С помощью ядерной накачки можно возбуждать большие объемы плотного газа (~ нескольких м³ при давлении до 10 атм), при этом величина энергии накачки практически не имеет ограничений - всё определяется температурной стойкостью элементов конструкции устройства. Оценки показывают, что прямое одноступенчатое преобразование энергии ядерных частиц позволяет превращать в световое излучение до 70% их кинетической энергии [1,2].

Сегодня уже известны более сорока газовых и парогазовых сред, в которых наблюдается генерация лазерного излучения при ядерной накачке. Такие лазеры работают в квазинепрерывном режиме на переходах атомов, ионов, молекул, обеспечивают удельный энергоотъем световой энергии до 20 Дж с 1 литра активной среды за импульс накачки длительностью ~ 100 ÷ 200 мкс [3]. Достигнутый КПД использования вложенной в газ энергии ядерных частиц и превращения ее в когерентное излучение в существующих лазерах с ядерной накачкой составляет (~ 0,1 ÷ 5,0%) [4]. Эти параметры не являются максимальными и далеки от предельных. Дальнейшее повышение рабочих характеристик газовых лазеров с ядерной накачкой связано с поиском и использованием новых более эффективных газовых сред, обладающих высокой эффективностью преобразования энергии ядерных частиц в световое излучение. Потенциальными кандидатами таких сред являются эксимерные молекулы галогенидов инертных газов RgX^* и Rg_2X^* ($Rg = Ar, Kr, Xe; X = F, Cl, Br, I$) [4]. Эксимерные лазеры могут работать в квазинепрерывном режиме, поскольку их нижний рабочий уровень является слабо связанным или разлетным. При накачке пучками электронов высокой энергии эти молекулы являются мощными источниками УФ и видимого излучения. Ранние исследования [5-7] также подтвердили работоспособность эксимеров в условиях накачки ядерными излучениями.

Продукты ядерных реакций, которые используются для накачки активной среды лазера, представляют собой многозарядные ионы, обладающие кинетической энергией от 190 кэВ (ядра трития) до 100 МэВ (осколки деления урана). В газовой среде при 1 атм пробег таких ядерных частиц составляет ~ 1-10 см и даже выше в зависимости от типа частицы и материала среды. Из-за большой величины пробега, для эффективного использования энергии ядерных частиц давление газа активной среды должно составлять ~ 1 атм и выше.

Процессы, происходящие в ядерно-возбуждаемой плазме, сложны и многообразны, поскольку при высоких давлениях газа основную роль начинают играть столкновительные процессы с участием двух, трех и более

частиц. Высокие давления газа в ЛЯН благоприятствуют применению эксимерных сред в качестве активной среды, однако широкое их использование в ЛЯН сдерживается отсутствием или недостаточностью информации по излучательным характеристикам ядерно-возбуждаемой эксимерной среды, недостаточным знанием физических процессов создания инверсной заселенности уровней при ядерной накачке, сложностью и многообразием кинетических процессов в плотных эксимерных средах, отсутствием многих констант плазмохимических процессов. Все эти “белые” пятна могут быть закрыты только после проведения соответствующих детальных экспериментальных исследований газовых эксимерных сред. И в этой связи проведение экспериментальных исследований спектрально-кинетических характеристик люминесценции плотной ядерно-возбуждаемой плазмы смесей инертных газов и эксимерных сред на основе галогенидов инертных газов является необходимой задачей для понимания и уточнения действующих механизмов заселения и создания инверсной заселенности уровней, построения физической и математической модели такой плазмы, согласующейся с экспериментальными результатами.

Решению этих вопросов посвящена данная работа. Все сказанное выше подтверждает актуальность темы диссертации, её практическое и научное значение.

Цель и задачи работы

Цель диссертационной работы состояла в получении экспериментальной информации о спектральных, временных и генерационных характеристиках плотных газовых сред на основе смесей инертных газов и смесей инертных газов с галогеносодержащими соединениями при возбуждении импульсным электронным пучком электронов высокой энергии ($E_e=150\text{кэВ}$), изучении механизмов заселения рабочих уровней в этих средах и разработке на этой основе модели ядерно-возбуждаемой плазмы эксимерной среды, согласующейся с полученными экспериментальными данными.

Для достижения поставленной цели были решены следующие конкретные задачи:

1. На основе малогабаритного импульсного ускорителя электронов разработана и изготовлена экспериментальная установка для измерения спектрально-кинетических характеристик люминесценции плотных газовых смесей инертных газов и смесей инертных газов с галогеносодержащими соединениями при возбуждении импульсным пучком быстрых электронов с энергией 150кэВ и длительностью 5 нс.

2. Используя эту установку, проведен цикл экспериментальных исследований спектрально-кинетических характеристик плотных смесей инертных газов He, Ne, Ar, Kr, Xe и их смесей с воздухом, азотом, кислородом, водой. Измерения проводились в интервале длин волн 200-1200нм для газовых

смесей различного состава при давлениях газа в камере – от десятков Торр до 1520Торр. Измерены времена высвечивания отдельных уровней и определены константы тушения молекулярными примесями.

3. Проведены исследования спектрально-кинетических характеристик люминесценции эксимерных молекул XeCl^* , Xe_2Cl^* , KrCl^* и Kr_2Cl^* в плотных $\text{Xe}(\text{Kr})+\text{CCl}_4$, $\text{Ar}+\text{Xe}(\text{Kr})+\text{CCl}_4$, $\text{He}+\text{Ar}+\text{Xe}+\text{CCl}_4$ газовых смесях различного состава и давления. Рассмотрена кинетика образования эксимерных молекул в газовых средах различного состава в условиях импульсной накачки пучком быстрых электронов, Измерены константы тушения эксимерной люминесценции, определены оптимальные составы газовых смесей и проведены компьютерные расчеты параметров эксимерной плазмы и её излучательных характеристик.

4. Проведены исследования усилительных характеристик триплексных молекул Xe_2Cl^* в “жидких” газовых смесях $\text{Xe}+\text{CCl}_4$, $\text{Ar}+\text{Xe}+\text{CCl}_4$ при импульсной накачке пучком быстрых электронов небольшой мощности

5. Разработана кинетическая модель плазмохимических процессов ксенон-содержащей эксимерной плазмы на основе молекул XeCl^* и Xe_2Cl^* .

Научная новизна работы

Научная новизна работы определяется следующими результатами:

-впервые проведены комплексные исследования люминесценции эксимерных молекул XeCl^* , Xe_2Cl^* , KrCl^* , Kr_2Cl^* , в газовых смесях $\text{Xe}(\text{Kr})+\text{CCl}_4$, $\text{Ar}+\text{Xe}+\text{CCl}_4$, с низким содержанием донора CCl_4 . Показано, что при низких концентрациях галогеносодержащего донора (CCl_4), в ксенон или криптон-содержащих газовых смесях высокого давления происходит эффективное образование эксимерных молекул XeCl^* , KrCl^* , Xe_2Cl^* , Kr_2Cl^* , многократно превышающее содержание этих молекул в газовых смесях с повышенным содержанием галогеносодержащего донора;

- показано, что в газовых смесях $\text{Xe}+\text{CCl}_4$, $\text{Ar}+\text{Xe}+\text{CCl}_4$ с низким содержанием донора имеет место усиление спонтанного излучения во всем спектральном диапазоне излучения молекулы Xe_2Cl^* (переходы $4^2\text{Г}^-1,2,3^2\text{Г}^*$, диапазон длин волн 430÷650 нм) в условиях накачки импульсным пучком быстрых электронов умеренной мощности $\sim 7 \text{ кВт/см}^3$;

- показано, что в газовых смесях $\text{Ar}+\text{Xe}+\text{CCl}_4$ с низким содержанием CCl_4 имеет место генерация лазерного излучения на В-Х переходе молекулы XeCl^* ($\lambda=308 \text{ нм}$) в условиях накачки импульсным пучком быстрых электронов умеренной мощности $\sim 7 \text{ кВт/см}^3$;

- показано, что основным каналом образования эксимерных молекул Xe_2Cl^* в газовых смесях $\text{Xe}+\text{CCl}_4$, $\text{Ar}+\text{Xe}+\text{CCl}_4$ с низким содержанием донора (CCl_4) является реакция ион-ионной рекомбинации молекулярного иона Xe_2^+ с отрицательными ионами хлорсодержащего донора CCl_4 или его отрицательно заряженными радикалами.

Положения и результаты, выносимые на защиту

На защиту выносятся:

1. Результаты экспериментальных исследований спектрально-кинетических характеристик люминесценции эксимерных молекул XeCl^* , Xe_2Cl^* , KrCl^* , Kr_2Cl^* в “жидких” газовых смесях $\text{Xe}+\text{CCl}_4$, $\text{Ar} + \text{Xe} + \text{CCl}_4$, при накачке импульсным пучком быстрых электронов с энергией 150 кэВ.
2. Результаты исследований усиленного спонтанного излучения эксимерной молекулы Xe_2Cl^* (переходы $4^2\text{Г} - 1,2,3^2\text{Г}$, диапазон длин волн 430÷650 нм) и лазерного излучения эксимерной молекулы XeCl^* (В-Х переход, $\lambda=308$ нм) в условиях накачки импульсным пучком быстрых электронов умеренной мощности ~ 7 кВт/см³.
3. Модель кинетических процессов и результаты компьютерных расчетов характеристик ядерно-возбуждаемой эксимерной плазмы, образующейся в жидких газовых смесях $\text{Xe}+\text{CCl}_4$, $\text{Ar}+\text{Xe}+\text{CCl}_4$ при накачке заряженными частицами высокой энергии.
4. Установка для проведения экспериментальных исследований спектрально-кинетических и генерационных характеристик двухатомных и трехатомных эксимерных молекул галогенидов инертных газов.
5. Результаты экспериментальных исследований спектрально-кинетических характеристик плотных смесей инертных газов He , Ne , Ar , Kr , Xe и их смесей с воздухом, азотом, кислородом, водой, измерение времен высвечивания отдельных уровней и определение констант тушения молекулярными примесями.

Научная и практическая значимость работы

Научное и практическое значение работы определяется открытием эффективного механизма образования двухатомных и трехатомных эксимерных молекул ксенон- и криптон-содержащих галогенидов инертных газов в Xe , Kr и Ar-Xe газовых смесях высокого давления при низких содержаниях доноров CCl_4 и получение генерации на В-Х переходе эксимерной молекулы XeCl^* ($\lambda=308$ нм) в условиях накачки импульсным пучком быстрых электронов умеренной мощности ~ 7 кВт/см³. Использование таких обедненных смесей в качестве активной среды лазеров с накачкой заряженными частицами высокой энергии позволяет создавать широкополосные перестраиваемые лазеры видимого диапазона, и ультрафиолетовые лазеры, имеющие высокую эффективность.

Апробация работы

Результаты диссертации докладывались на международной конференции DAAD-2009 (МИФИ, 6-8 ноября 2009 г), на научных сессиях МИФИ (секция

“Лазерная физика”) в 2010г, 2011г, 2012г, 2013г. Основное содержание диссертации опубликовано в 9 печатных работах, из них 3 статьи в журналах из списка ВАК. Их список приведен в конце автореферата.

Структура и объём диссертации

Диссертация состоит из Введения, 4 глав, заключения, списка литературы. Полный объём составляет 150 страниц машинописного текста, включая 63 рисунков, 15 таблиц и библиографию из 119 наименований.

Краткое содержание работы.

Во введении обоснованы актуальность и новизна темы, указано научное и практическое значение работы, определены цели и представлены основные положения и результаты диссертации, выносимые на защиту.

В первой главе – вводной – приводится обзор литературы, посвященной исследованиям эксимерных сред и разработке эксимерных лазеров на галогенидах инертных газов с накачкой частицами высокой энергии. В ней рассматриваются основные физические процессы возбуждения плотных газовых сред ядерными частицами и быстрыми электронами, основные физические процессы образования эксимерных молекул при накачке плотных газовых сред высокоэнергетичными продуктами ядерных реакций и быстрыми электронами, обсуждаются результаты экспериментальных исследований по накачке эксимерных газовых сред электронами высокой энергии.

Показано, что преобразование энергии ядерных частиц в световое излучение происходит в многоступенчатом процессе, включающем процессы торможения ядерных частиц в буферном газе, приводящем к образованию так называемой ядерно-возбуждаемой плазмы - плазмы, имеющей высокую плотность, низкую температуру электронов, трековую структуру, низкую степень ионизации ($\sim 10^{-5} \div 10^{-6}$). Быстрые электроны, образующиеся в процессе ионизации газа ядерной частицей, за счет упругих и неупругих столкновений теряют свою энергию и за время $10^{-9} \div 10^{-8}$ с в плотном газе устанавливается равновесное распределение электронов по энергии.

Энергетический спектр электронов ядерно-возбуждаемой плазмы определяется четырьмя энергетическими группами электронов, из которых наиболее важными для образования эксимерных молекул являются так называемые подпороговые электроны с энергией, меньшей энергии самого нижнего уровня атома буферного газа.

Все плазмохимические процессы, связанные с передачей кинетической энергии ядерной частицы буферному газу, происходят в пределах объема трека, поскольку в такой плазме диффузионные процессы сильно замедлены. До

момента начала перекрытия треков параметры образующейся плазмы слабо зависят от удельного энерговклада в газ.

Образование эксимерных молекул галогенидов инертных происходит в столкновительных процессах с участием многих частиц, находящихся в основном и возбужденном состояниях, включая атомарные и молекулярные ионы и электроны плазмы. Возбужденные состояния молекулы двухатомных галогенидов инертных газов характеризуются ионной связью с переносом заряда и коррелируют при бесконечно большом меядерном расстоянии с состояниями $Rg^+(^2P_{1/2,3/2})$ положительного иона инертного газа и $H(^1S_0)$ отрицательного иона галогена, а трехатомных – с положительным молекулярным ионом $Rg_2^+(^2P_{1/2,3/2})$ и отрицательным ионом $H(^1S_0)$ (здесь Rg и H означают атомы инертного газа (Rare Gas) и атомы донора (Halogen)). Нижнее состояние двухатомной эксимерной молекулы состоит из двух подуровней: слабосвязанного X-состояния, образованного из атомов $Rg(^1S_0) + H(^2P_{3/2})$, и разлетного A-состояния, образованного атомами $Rg(^1S_0) + H(^2P_{1/2})$. Радиационные переходы в нижнее состояние представляют собой узкую B-X полосу шириной ~ 1 нм и широкую (~ 20 нм) C - A полосу. Трехатомная молекула Rg_2H^* излучает широкую (~ 100 нм) полосу в видимом диапазоне длин волн, обусловленную переходами между сильно связанным ионным верхним состоянием молекулы Rg_2H^* (образовано из ионов Rg_2^+ и H^-) и нижним разлетным состоянием, образованным возбужденной молекулой Rg_2^* и атомом H в основном состоянии.

В плотной газовой среде при тепловых энергиях электронов происходит эффективная рекомбинация атомарных и молекулярных ионов. Эти процессы конкурируют с реакциями прилипания и образования отрицательных ионов галогена, и реакцией ион-ионной рекомбинации, в результате которой происходит образование эксимерных молекул галогенидов инертных газов.

В литературе описываются компьютерные методы расчета характеристик плазмы эксимерных сред: относительно универсальные кинетические модели эксимерного лазера $XeCl^*$ предложены в работах [8,9], которые учитывают от 100 до 200 плазмохимических реакций и более 40 компонентов плазмы. Однако эти модели не могут адекватно описывать образование трехатомных эксимерных молекул из-за недостаточности имеющейся в литературе информации о свойствах этих молекул.

Следует заметить, что в расчетных моделях в качестве донора атомов галогена обычно используется молекула HCl. В 1983 году, G. Marowsky и др. [7] изучали применение различных доноров атомов галогенов, и обнаружили, что для образования эксимера Xe_2Cl^* , четыреххлористый углерод CCl_4 является наиболее предпочтительным кандидатом. Однако модели расчетов эксимерной плазмы для этого донора в литературе не имеется.

Вторая глава - методическая. В ней описываются используемые в диссертационной работе экспериментальные установки и оборудование для

получения и исследования плотной низкотемпературной плазмы, приводятся методики изучения спектральных, временных, генерационных характеристик эксимерных сред и плотных газовых смесей инертных газов, и методики определения констант плазмохимических процессов.

Блок-схема экспериментальной установки для исследования спектрально-кинетических характеристик плазмы приведена на рис.1. Для возбуждения плотных газовых смесей в работе использовался импульсный пучок быстрых электронов с энергией 150кэВ, длительностью импульса 5 нс. Такие параметры пучка обеспечивали удельный энерговклад в исследуемую газовую среду $\sim 0,004$ Дж/импульс. Применялась поперечная схема ввода пучка (рис.1)

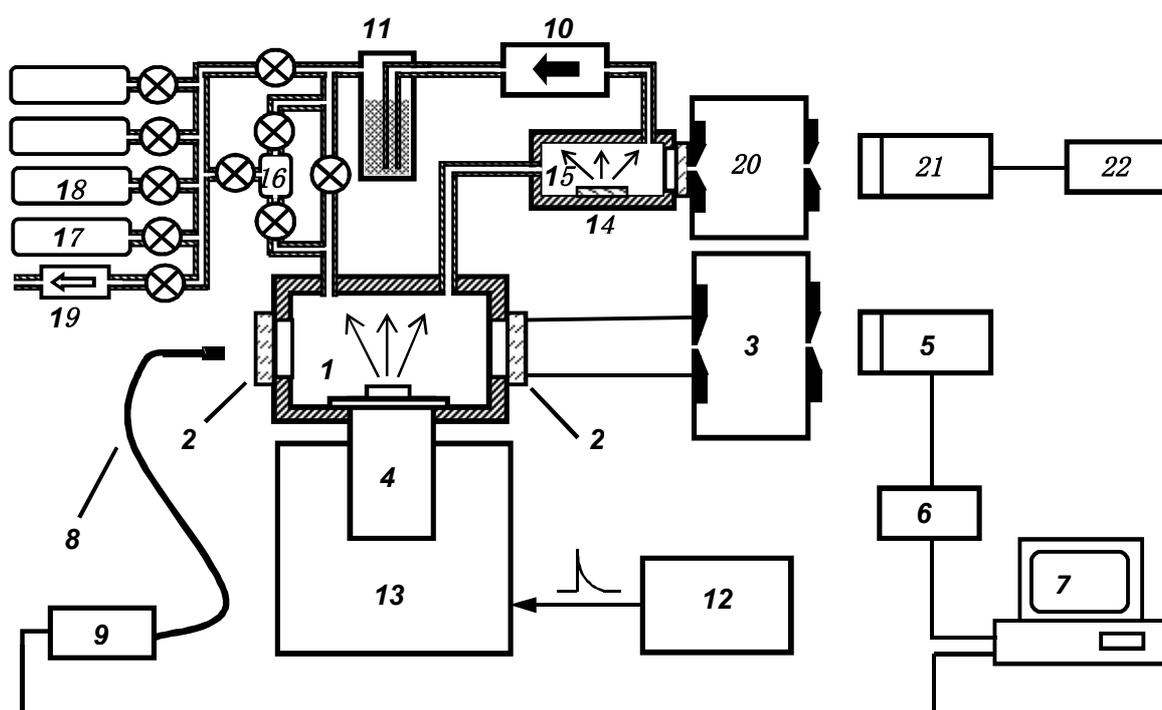


Рис.1 Блок-схема экспериментальной установки для измерения спектрально-кинетических характеристик люминесценции газовых смесей при возбуждении импульсным пучком быстрых электронов с энергией 150 кэВ, и альфа-частицами ^{238}Pu с энергией 5 МэВ.

1-камера, 2-кварцевое окно, 3-монохроматор МДР-23, 4- ускоритель электронов "Арина-2", 5- фотоумножитель ФЭУ-106, 6- цифровой осциллограф RigolDS 5022MS, 7- компьютер IBM PC, 8- волоконный световод, 9- спектрометр MAYA-2000 Pro, 10- циркуляционный насос, 11- титановый фильтр, 12- блок запуска ускорителя и синхронизации, 13- высоковольтный блок питания ускорителя, 14- дополнительная камера с двумя кварцевыми окнами, 15- источник альфа-частиц ^{238}Pu , 16- мерная трубка, 17- баллон с газообразным Хе, 18- емкость с жидким CCl_4

Установка состояла из модернизированного ускорителя электронов "Арина-2", снабженного отпаянной электронной трубкой ИМА-150Э (4) с взрывоэмиссионным катодом и камеры из нержавеющей стали $\varnothing 100 \times 120$ мм (1). Размер области газовой среды, которая засвечивалась электронным пучком, на

оси камеры представляла собой диск диаметром 4см. Ускоритель мог работать в режиме одиночных импульсов со скважностью $\sim 10 \div 20$ с.

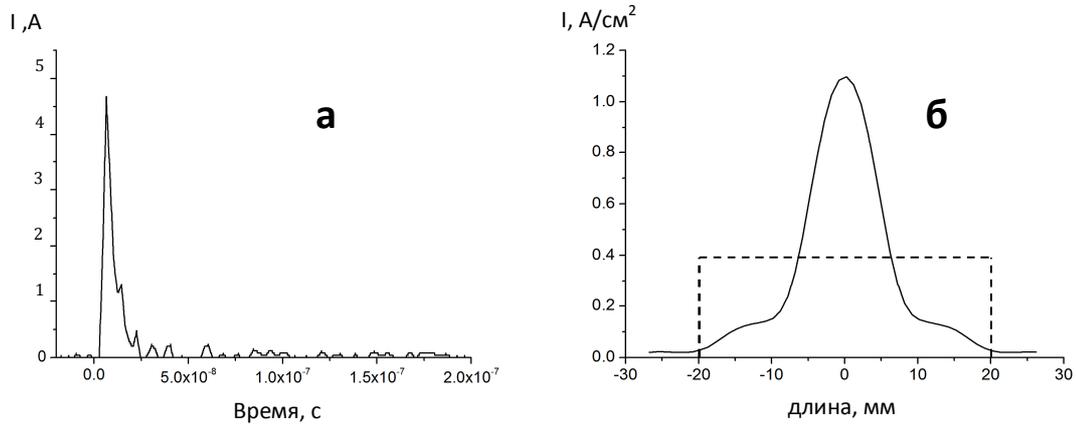


Рис.2. Осциллограмма электронного импульса накачки (а) и пространственное распределение плотности тока пучка на оси камеры (б). Пунктиром показаны усредненные значения тока пучка.

Осциллограммы (рис.2) записаны с помощью быстрого цифрового осциллографа Rigol 5022ME и плоского зонда, размещенного непосредственно перед трубкой ИМА-150Э на входе пучка в газ.

Удельная мощность энергоклада в газовую смесь q , создаваемую электронным пучком, определяется произведением плотности тока пучка быстрых электронов накачки I на сумму полных потерь энергии электронов в каждом сорте газа $(-dE/dx)_i$ с учетом парциального давления p_i каждой компоненты газовой смеси:

$$q = I \cdot \sum (-dE/dx)_i \cdot p_i, \quad (1)$$

где

$$(-dE/dX) = 0,036 \cdot \rho \cdot \left(\frac{Z}{A}\right) \cdot \beta^{-2} \cdot \ln(1,16E_0/I) \text{ (МэВ/см)} \quad (2)$$

Полные потери энергии определяют длину пути, проходимого заряженной частицей в веществе до ее остановки:

$$L(E_0) = \int_0^{E_0} dE / (-dE/dx) \quad (3)$$

Для электронов траектория их движения в среде отличается от прямолинейной. Поэтому толщина слоя вещества $R(E_0)$, проходимого электроном до его остановки в направлении первоначального движения до первого соударения, меньше длины истинного пути электрона в веществе $L(E_0)$.

Остаточный пробег $(R_0 - X)$ и остаточная кинетическая энергия электрона E_e после прохождения слоя вещества толщиной X (г/см^2) согласно [11] могут быть выражены как

$$R_0 - X = 0,161 \cdot [(1 + 25 \cdot E_e^2)^{0,5} - 0,9865] \cdot Z^{-0,2} \text{ г/см}^2, \quad (4)$$

где

$$E_e = \frac{1}{5} \sqrt{\left(\frac{R_0 - X}{0,161 \cdot Z^{-0,2}} + 0,9865\right)^2 - 1} \quad (5)$$

Остаточная кинетическая энергия E_e электрона после прохождения слоя газообразного ксенона толщиной X (см) показана на рис.3 для разных давлений $P_{Xe} = 2$ атм, 1,5атм и 1атм. Начальная энергия электронов $E_0 = 150$ кэВ.

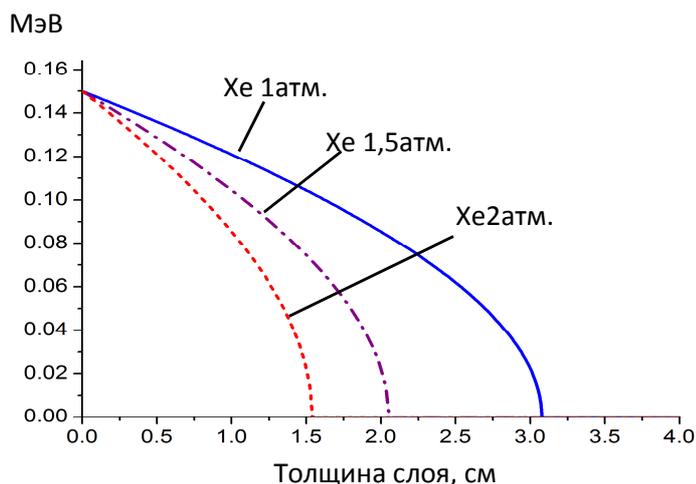


Рис.3. Остаточная энергия электрона с начальной энергией 150кэВ после прохождения слоя газообразного ксенона толщиной X (см) для $P_{Xe} = 2$ атм, 1,5атм и 1атм.

Удельный энерговклад q , создаваемый единичным электроном с энергией E_0 в газе, может быть выражен как изменения в энергии электрона и изменения коэффициента пропускания:

$$-\frac{d(\eta E_e)}{dX} = -\frac{dQ}{\rho ds} = \frac{1,24 \cdot [1 + \exp(-n \cdot n_0)] \cdot [6,2 \cdot (R_0 - X) \cdot Z^{0,2} + 0,99] \cdot Z^{0,2}}{\left\{1 + \exp\left[n \cdot \left(\frac{X}{R_0} - n_0\right)\right]\right\} \cdot \{[6,2 \cdot (R_0 - X) \cdot Z^{0,2} + 0,99]^2 - 1\}^{0,5}} + \frac{0,2 \cdot n \cdot [1 + \exp(-n \cdot n_0)] \cdot \{[6,2 \cdot (R_0 - X) \cdot Z^{0,2} + 0,99]^2 - 1\}^{0,5} \cdot \exp\left[n \cdot \left(\frac{X}{R_0} - n_0\right)\right]}{R_0 \cdot \left\{1 + \exp\left[n \cdot \left(\frac{X}{R_0} - n_0\right)\right]\right\}^2}$$

Здесь ρ – плотность газа, г/см³; s –толщина слоя газа в направлении первоначального движения электрона, см; E_e - остаточная кинетическая энергия электрона, МэВ; $n = 9,2Z^{-0,2} + 16Z^{-2,2}$; $n_0 = 0,63 \frac{Z}{A} + 0,27$; A и Z – массовое число и атомный номер вещества;

Электронный пучок, создаваемый трубкой ИМА150Э, имеет энергию электронов 150 кэВ, ток пучка 5А и длительность импульса 5 нс. Радиус пучка у окна трубки равен 1 см. Угол расходимости электронного пучка был измерен и оказался равным $26,6^\circ$.

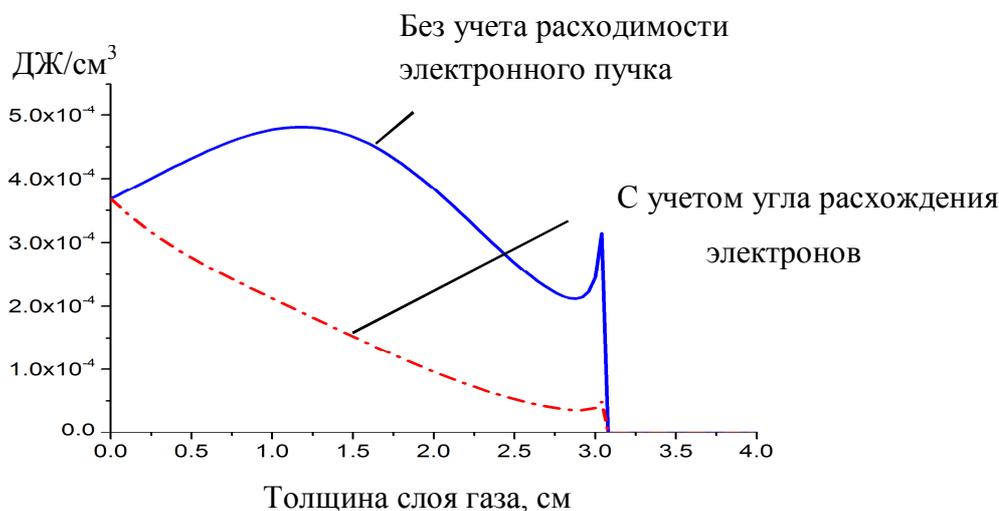


Рис.4. Удельный энерговклад q (Дж/см³), создаваемый электронным пучком в газообразном ксеноне при давлении 1 атм. Энергия электронов 150кэВ, ток пучка 5А, длительность импульса 5 нс

Поперечное сечение электронного пучка S в зависимости от расстояния s до окна трубки в этом случае может быть записано как $S = \pi \cdot (0.5 \cdot s + 1) \text{см}^2$. Удельный энерговклад q (Дж/см³), создаваемый импульсным электронным пучком в ксеноне при давлении 1 атм, в зависимости от расстояния до окна трубки, показан на рис. 4

При проведении спектральных исследований к камере (1) с помощью кварцевого световода (8) (длина 1,5м) и согласующей линзы подключался спектрометр с ПЗС-матрицей МАУА-200Pro. Это позволяло записывать мгновенные спектры люминесценции эксимерной среды, инициируемые импульсным пучком электронов ускорителя «Арина-2», в спектральном диапазоне 200-1200 нм.

При измерениях времен высвечивания отдельных атомных и молекулярных уровней использовался монохроматор МДР-23 с фотоумножителями ФЭУ-62, ФЭУ-79 и ФЭУ-106 (в зависимости от спектрального диапазона). В этом случае световое излучение из камеры (1) проходило через оба окна камеры (2), установленной на входной щели монохроматора МДР-23, и регистрировалось фотоумножителем.

Энергетическая калибровка спектрометра в диапазоне длин волн 360-1200 нм проводилась с помощью широкодиапазонной температурной лампы накаливания ТРШ-2850, имеющей цветовую температуру 2850К при

паспортном режиме питания (ток накала – 7,86 А при постоянном напряжении 6,4 В), а в УФ диапазоне – с помощью спектральной лампы ДВС-20.

При работе с чистыми инертными газами или их смесями газ непрерывно прокачивался и очищался для устранения тушащего действия примесных газов (H_2O , N_2 , CO_2 др.), десорбируемых со стенок камеры.

Возможность измерения импульсов люминесценции газовых смесей наносекундной длительности позволяет экспериментально определять константы плазмохимических процессов. При высоких давлениях газовой среды эффективные времена жизни уровней атомов и молекул отличаются от чисто радиационных величин, относящихся к изолированному атому или молекуле. В сложных газовых смесях имеет место процесс обмена энергией между отдельными компонентами газовой среды, что приводит как к увеличению времени жизни отдельных энергетических уровней, так и к уменьшению, связанному с процессами столкновительного тушения возбужденных состояний отдельными компонентами газовой среды. В общем случае населенность верхнего уровня $N(t)$ в момент времени t определяется уравнением:

$$dN(t)/dt = S(t) - N(t) \cdot A \quad (6)$$

Здесь A - коэффициент Эйнштейна для рассматриваемого перехода. $S(t)$ – функция накачки, описывающая процесс заселения верхнего уровня во времени, в том числе и за счет более медленных (по сравнению с импульсом накачки) плазмохимических процессов. Функция $S(t)$ учитывает все возможные плазмохимические процессы заселения и дезактивации уровня кроме радиационного распада. Очевидно, что время высвечивания уровня будет совпадать с радиационным временем жизни, равным $\tau = 1/A$, только при условии $S(t)=0$. Функция накачки верхнего уровня $S(t)$ позволяет оценить вклад процесса прямого возбуждения уровня быстрыми электронами пучка и вклад вторичных плазмохимических процессов. Вид функции заселения $S(t)$ можно определить из измеренных временных зависимостей интенсивности $I(t)$ радиационного перехода с этого уровня. Поскольку $I(t) = N(t) \cdot A$, то с учетом (6) функция $S(t)$ будет равна:

$$S(t) = \frac{1}{A} \cdot \frac{dI(t)}{dt} + I(t) \quad (7)$$

В виде примера на рис.5а,б показана осциллограмма импульса излучения с длиной волны $\lambda=585,2$ нм (переход $2p_1-1s_2$ NeI) и вид функции накачки $2p_1$ уровня NeI. Вклад процесса прямого возбуждения уровня составляет 13%.

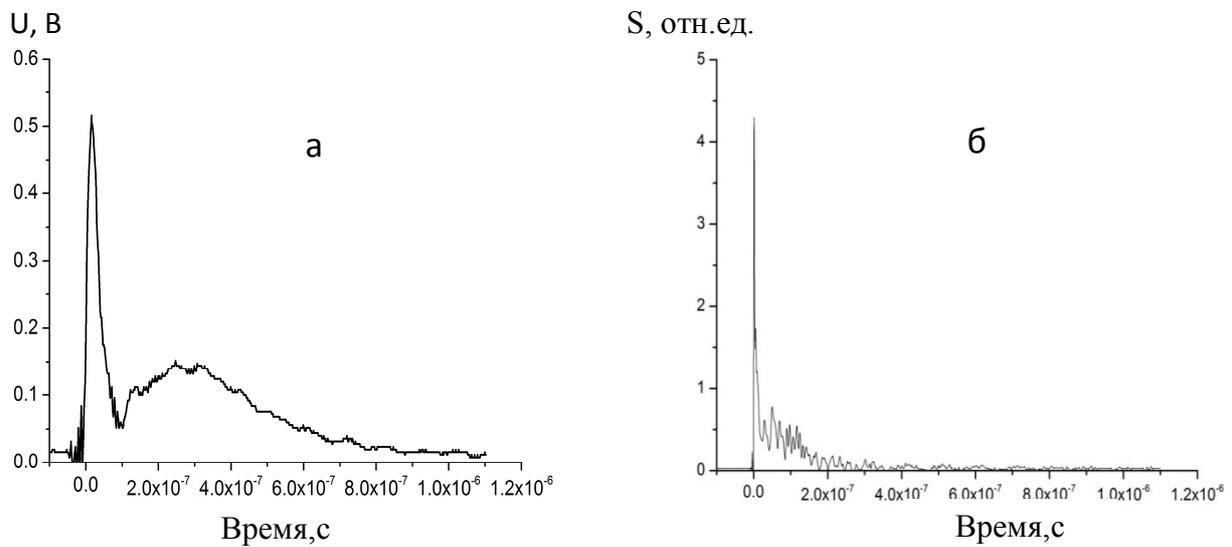


Рис.5. Временная осциллограмма импульса люминесценции $2p_1$ уровня NeI переход $3p^1[1/2]_0 - 3s^1[1/2]_1$, $\lambda = 585,2$ нм), возбуждаемую пучком быстрых электронов с энергией 150 кэВ при давлении Ne 1atm (а), и вид функции накачки (б).

Для определения коэффициентов скоростей реакций тушения использовался метод Штерна – Фольмера, в основу которого положена линейная зависимость обратного времени высвечивания $1/\tau$ данного уровня от концентрации X тушащего газа. Экстраполируя линейную зависимость $1/\tau = f(X)$ до пересечения с осью ординат, точка пересечения определяет $1/\tau_0$ -обратное радиационное время жизни данного уровня для спонтанного перехода, а тангенс угла наклона - коэффициент скорости реакции тушения атомами (или молекулами) газа X.

Временные осциллограммы импульса генерации позволяют оценить усиление активной среды. Рассматривая последовательное прохождение луча света между зеркалами в усиливающей среде, можно показать, что при условии ненасыщенного усиления амплитуды импульсов тока I_1 и I_2 , зарегистрированные фотоприемником в начальные моменты времени развития генерации t_1 и t_2 , соотносятся между собой как:

$$I_1/I_2 = (\rho_1 \cdot \rho_2) \cdot m \cdot \exp[2 \cdot m \cdot \kappa \cdot L] \quad (8)$$

Здесь ρ_1 , ρ_2 – коэффициенты отражения глухого и выходного зеркала; κ – коэффициент усиления активной среды; $m = c \cdot (t_1 - t_2) / 2L_0$ – число проходов светового луча между зеркалами за промежуток времени $(t_1 - t_2)$; L и L_0 – длина активной среды лазера и расстояние между зеркалами.

Отсюда получаем:

$$\kappa = [\ln(I_1 / I_2) - m \cdot \ln(\rho_1 \cdot \rho_2)] / 2 \cdot m \cdot L \text{ см}^{-1} \quad (9)$$

Т.к. $k = \sigma(308) \cdot \Delta N$, то можно определить инверсную заселенность ΔN верхнего рабочего уровня эксимерной молекулы, а зная удельный энерговыход q – можно найти КПД лазера:

$$\text{КПД} = \Delta N \cdot A \cdot hv/q \quad (10)$$

В третьей главе приводится полученная в диссертации расчетная и экспериментальная информация по спектральным, временным и генерационным характеристикам многокомпонентных ксенон-содержащих эксимерных сред с низким содержанием хлорсодержащего донора CCl_4 в смеси. Для возбуждения таких газовых смесей использовался импульсный пучок быстрых электронов малой мощности. Измерение спектрального состава излучения эксимерных молекул XeCl^* и Xe_2Cl^* производилось в диапазоне длин волн 200–1200 нм на установке, описанной в главе 2.

Для образования эксимерных молекул XeCl^* и Xe_2Cl^* четыреххлористый углерод CCl_4 является наиболее эффективным хлорсодержащим донором. Следует заметить, что эффективность возбуждения В-состояния молекулы XeCl^* и 4^2G -состояния молекулы Xe_2Cl^* сильно зависит от концентрации ксенона и содержания галогеносодержащего донора CCl_4 , и достигает максимальных значений уже при небольших концентрациях CCl_4 . На рис. 6а, б показаны спектры люминесценции $\text{Xe}-\text{CCl}_4$ газовой смеси с высоким (~ 1 Торр) и низким ($\sim 0,1$ Торр) содержанием CCl_4 , возбуждаемую пучком быстрых электронов с энергией 150 кэВ при давлении Xe , равном 2,5 атм.

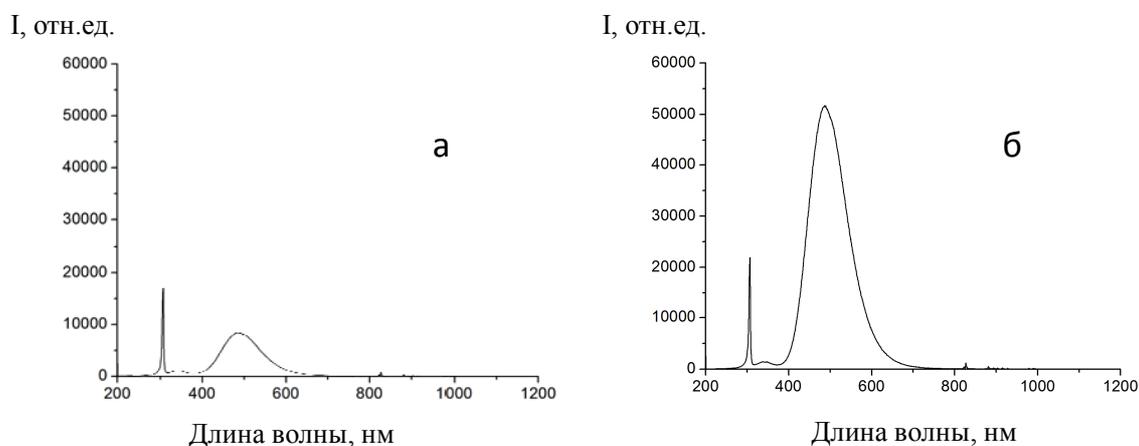


Рис.6. Спектры люминесценции $\text{Xe}-\text{CCl}_4$ газовой смеси с высоким (~ 1 Торр)(а) и низким ($\sim 0,1$ Торр) (б) содержанием CCl_4 , возбуждаемой пучком быстрых электронов с энергией 150 кэВ при давлении Xe , равном 2,5 атм

Спектры состоят из полос эксимерной молекулы XeCl^* с максимумом при 308 нм (переход В-Х), более слабой полосы при 345 нм (переход С-А), и широкой полосы в области длин волн 400–650 нм, излучаемой трехатомной эксимерной молекулой Xe_2Cl^* . В длинноволновой области спектра ($\lambda > 800$ нм) наблюдаются слабые бр-6s линии атомарного ксенона, интенсивность которых уменьшается с увеличением концентрации CCl_4 . Световыход полос молекул XeCl^* и Xe_2Cl^* , определяемый по площади пиков полос люминесценции

$S = \int_{\lambda_1}^{\lambda_2} I(\lambda) d\lambda$, приведен на рис 7а, б для Хе–ССl₄ газовой смеси для молекул ХеСl* (полоса 308 нм) и Хе₂Сl* (полоса 486 нм в зависимости от содержания Хе (рис.7а) и ССl₄ (рис.7б)

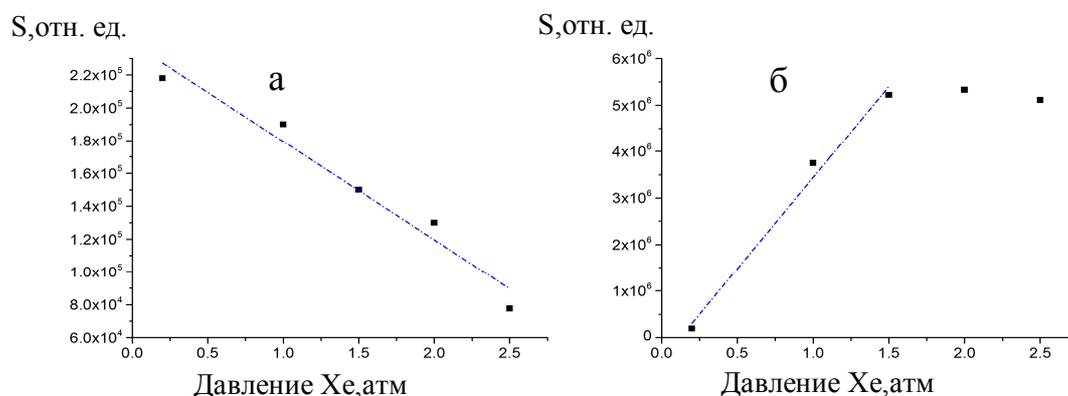


Рис.7. Площади В-Х полосы молекулы ХеСl* ($\Delta\lambda=290 \div 315$ нм) (а) и 4²Г-1²Г полосы молекулы Хе₂Сl* ($\Delta\lambda=400 \div 650$ нм) (б) в зависимости от давления Хе. Содержание донора ССl₄ в смеси - 0,036 Торр

Измерения временных характеристик люминесценции Хе–ССl₄ и Аг–Хе–ССl₄ газовых смесей проводились для Хе–ССl₄ смесей, содержащих от 0,03Торр до 1 Торр ССl₄ и от 38Торр до 2,5атм Хе. Были измерены времена высвечивания (В–Х), (С–А) и (4²Г–1²Г) полос молекул ХеСl* и Хе₂Сl* на длинах волн, соответствующих их максимальным значениям интенсивности – 308нм (В–Х), 345нм (С–А) и 486нм (4²Г–1²Г)

При высоком давлении Хе (рис.8), длительность переднего фронта импульса В-Х полосы молекулы ХеСl* составляет около 40нс при давлении ксенона 2,5 атм, и около 75нс – у полосы (4²Г – 1²Г) молекулы Хе₂Сl*.

В смесях с низким содержанием Хе (рис.9) в этом случае наблюдаются небольшое увеличение длительности переднего фронта импульса В - полосы молекулы ХеСl* (~42 нс) и сильное увеличение длительности переднего фронта для (4²Г – 1²Г) полосы молекулы Хе₂Сl* (до 137нс).

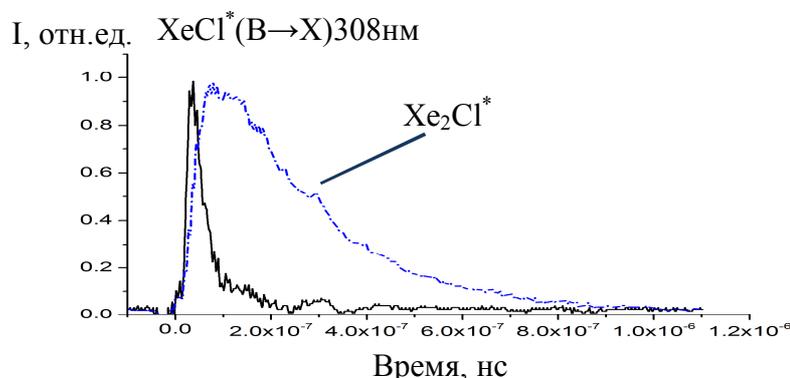


Рис.8. Временные осциллограммы импульсов люминесценции Хе–ССl₄ газовой смеси, возбуждаемой пучком быстрых электронов с энергией 150 кэВ при давлении Хе-2,5атм, ССl₄- 0,036Торр.

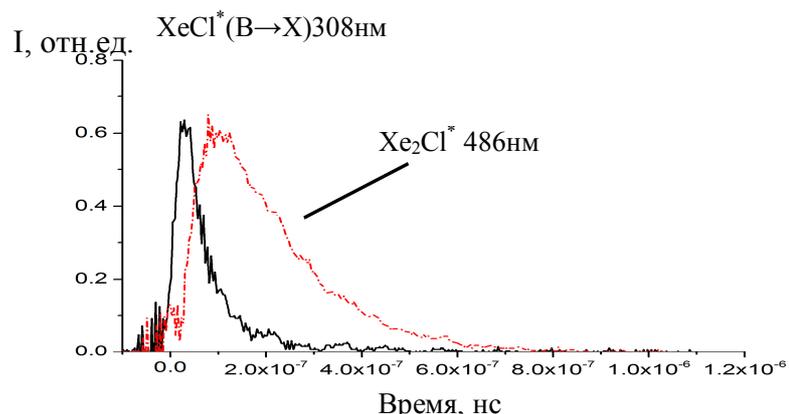


Рис.9. Временные осциллограммы импульсов люминесценции Хе-ССl₄ газовой смеси возбуждаемой пучком быстрых электронов с энергией 150 кэВ при давлении Хе-152Торр, ССl₄-0,036Торр.

Времена высвечивания (В-Х) и ($4^2\Gamma-1^2\Gamma$) полос молекул ХеСl^{*} и Хе₂Сl^{*} зависят от содержания ССl₄ в смеси (рис.10). При этом наиболее сильные изменения наблюдаются для ($4^2\Gamma-1^2\Gamma$) полосы молекулы Хе₂Сl^{*} (рис.10б). Измерения кривых высвечивания молекулярных полос для смесей различного состава позволяют определить константы тушения люминесценции молекул ХеСl^{*} и Хе₂Сl^{*} компонентами смеси Хе и ССl₄. На рис.11 приведены полученные результаты для В-Х полосы ХеСl^{*} (308 нм) и $4^2\Gamma-1^2\Gamma$ полосы молекулы Хе₂Сl^{*} ($\lambda_{\text{макс}}=486$ нм). Константы тушения этих полос молекулами ССl₄ и радиационные времена высвечивания определяются из зависимостей $1/\tau = f(\text{CCl}_4)$ и оказались соответственно равны:

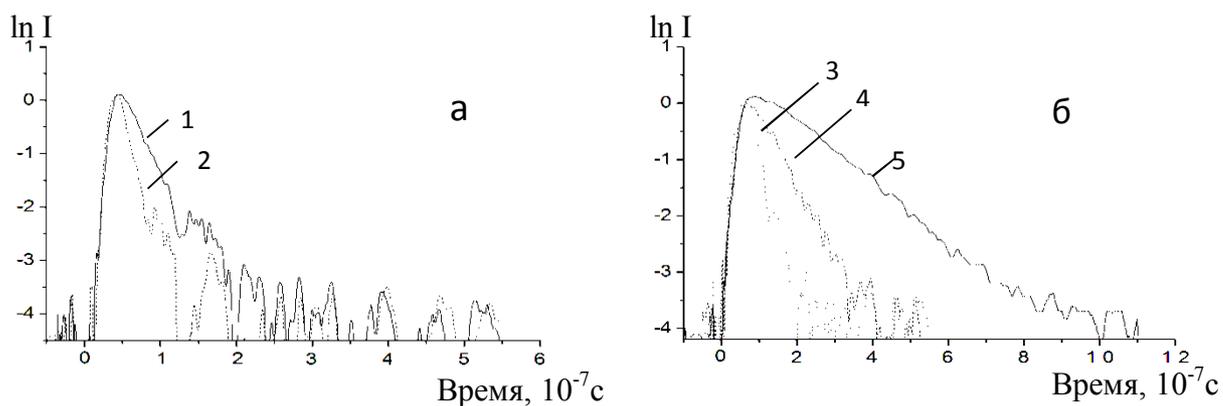


Рис.10.Кривые высвечивания (в логарифмическом масштабе) В-Х полосы молекулы ХеСl^{*} ($\lambda=308$ нм) (а) и $4^2\Gamma-1^2\Gamma$ полосы молекулы Хе₂Сl^{*} ($\lambda_{\text{макс}}=486$ нм) (б) в Хе+ССl₄ в газовых смесях с различным содержанием ССl₄: 1- 0,036Торр; 2 - 0,324Торр; 3 - 0,324Торр; 4 - 0,072Торр 5 - 0,036Торр. Давление Хе – 500 Торр.

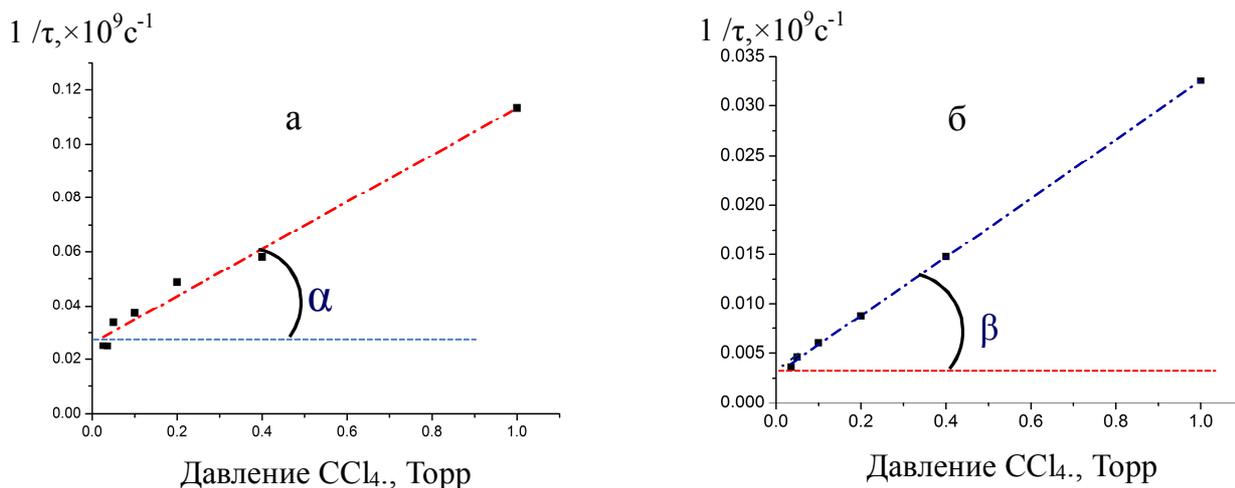


Рис.11. Обратное время высвечивания (В-Х) полосы молекулы HeCl^* (а) и ($4^2\Gamma-1^2\Gamma$) полосы молекулы He_2Cl^* (б) в зависимости от парциального давления CCl_4 в газовой смеси $\text{Xe}+\text{CCl}_4$. Давление $\text{Xe} = 760$ Торр, возбуждение смеси производилось импульсом электронов с энергией 150 кэВ и длительностью 5 нс.

-для В-Х полосы молекулы HeCl^* (308 нм) $-2,46 \cdot 10^{-9} \text{см}^3/\text{с}$ и 33нс (при 760Торр Хе);

-для $4^2\Gamma - 1^2\Gamma$ полосы молекулы He_2Cl^* ($\lambda_{\text{макс}} = 486$ нм) $- 2,29 \cdot 10^{-9} \text{см}^3/\text{с}$ $8,38 \cdot 10^{-10} \text{см}^3/\text{с}$ и 346нс(при 760Торр Хе).

Атомы Хе также могут вызывать тушение люминесценции молекул HeCl^* , однако их вклад проявляется значительно слабее, чем CCl_4 . Оценки показывают, что константы столкновительного тушения атомами Хе В-состояния молекулы $\text{HeCl}^* < 4 \cdot 10^{-12} \text{см}^3/\text{с}$. Тушение молекул He_2Cl^* атомами Хе не обнаружено

Измеренное время высвечивания В-Х перехода (308нм) молекулы HeCl^* сильно отличается от радиационного для В-состояния, составляющего по литературным данным 11нс [1]. Это можно объяснить только существованием медленного (по сравнению с радиационным временем) канала заселения этого уровня, что подтверждает отличный от нуля вид функции накачки $S(t) = 1/A \cdot dI(t)/dt + I(t)$, рассчитанный из осциллограмм кривых высвечивания В-Х полосы.

Экспериментальные исследования усилительных и генерационных характеристик $\text{Xe}-\text{CCl}_4$ и $\text{Ar}-\text{Xe}-\text{CCl}_4$ газовых сред проводились с использованием для накачки маломощного импульсного пучка электронов с энергией 150 кэВ, длительностью и амплитудой импульса тока пучка электронов 5нс и 5А. Использовались смеси следующего состава: (152 Торр Хе +36мТорр CCl_4) при определении усилительных характеристик перехода $4^2\Gamma-1^2\Gamma$ молекулы He_2Cl^* , и (1140Торр Ar + 12,5Торр Хе + 36мТорр CCl_4) – при определении генерационных характеристик В-Х перехода молекулы HeCl^* . Расстояние между зеркалами было равно 19 см, при этом длина активной среды лазера составляла 4 см. На оси лазерной кюветы амплитудное усредненное

значение плотности тока пучка быстрых электронов было равно $0,4\text{А/см}^2$ (рис.2, пунктир).

При использовании зеркал с коэффициентами отражения 99,8% (глухое зеркало) и 97,3 % (выходное) на длине волны 308нм и пропусканием $\sim 60\div 80\%$ в остальной части спектрального диапазона, была зарегистрирована низкопороговая генерация на длине волны 308 нм на В-Х переходе молекулы XeCl^* . Длительность импульса генерации на полувысоте составила $\sim 66\text{нс}$, что значительно превышает длительность импульса накачки (5нс) и радиационное время В-Х перехода молекулы XeCl^* (11нс). Это указывает на квазинепрерывный характер генерации на В-Х переходе молекулы XeCl^* . Записанные спектрограммы спектрального состава излучения и временные осциллограммы импульса генерации приведены на рис.12 и рис.13.

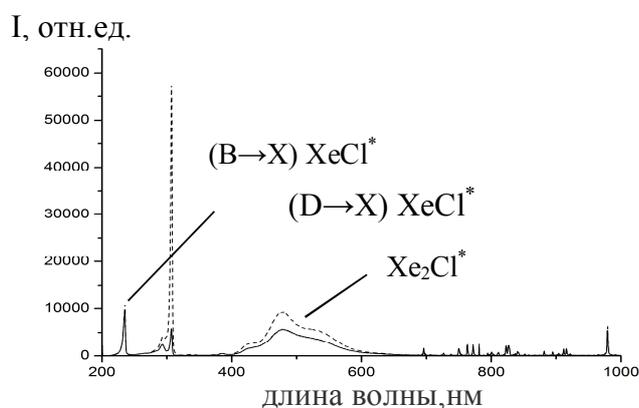


Рис. 12. Спектрограммы излучения Ag-Xe- CCl_4 эксимерного лазера с длиной волны генерации 308 нм при настроенном (пунктирная линия) и разъюстированном (сплошная линия) резонаторе. Длина активной среды – 4см, накачка производится импульсным пучком быстрых электронов с энергией 150кэВ и длительностью 5 нс. Состав газовых смесей: Ag-1140 Торр, Хе- 12,5 Торр, CCl_4 -36 мТорр (смесь Ag-Хе- CCl_4). Измерения выполнены спектрометром MAYA-2000Pro, разрешение 1 нм

Временные осциллограммы импульса генерации (рис.13) позволяют оценить усиление активной среды. Рассматривая последовательное прохождение луча света между зеркалами в усиливающей среде в моменты времени t_1 и t_2 , можно показать, что при условии ненасыщенного усиления амплитуды импульсов тока I_1 и I_2 , зарегистрированные фотоприемником в моменты времени развития генерации t_1 и t_2 , определяются выражением (8). Для условий нашего эксперимента $\rho_1 = 0,998$, $\rho_2 = 0,973$, $L = 4$ см, $L_0 = 19$ см, $\frac{I_1}{I_2} \approx 1,207$ (для моментов времени $t_1 = 15$ нс и $t_2 = 10$ нс от начала генерации; интервал $t_1 - t_2 = 5$ нс соответствует 4 проходам резонатора. Подставляя численные значения в (9), получаем коэффициент усиления среды $\kappa = 0,0085\text{см}^{-1}$. Для В-Х перехода молекулы XeCl^* ($\lambda = 308$ нм) сечение

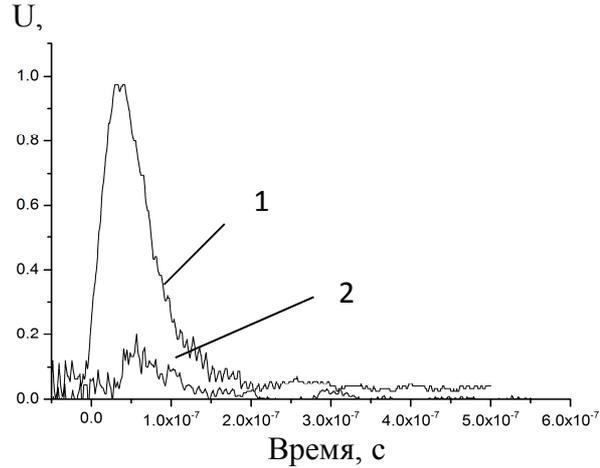


Рис. 13. Временные осциллограммы импульсов излучения Ar-Xe-CCl₄ эксимерных лазеров с длиной волны генерации 308 нм при настроенном (1) и разъюстированном (2) резонаторе. Длина активной среды – 4см, накачка производится импульсным пучком быстрых электронов с энергией 150кэВ и длительностью 5 нс. Состав газовых смесей: Ar- 1140Торр, Хе- 12,5 Торр, CCl₄ -36 мТорр.

вынужденного испускания определяется выражением

$$\sigma(308) = \frac{1}{4\pi} \cdot \left(\frac{\ln 2}{\pi}\right)^{0,5} \cdot A \cdot \frac{\lambda^4}{c} \cdot \Delta\lambda = 7,275 \cdot 10^{-16} \text{см}^2. \quad (10)$$

Здесь $\lambda = 3,08 \cdot 10^{-5} \text{см}$, $\Delta\lambda = 1,4 \cdot 10^{-7} \text{см}$, $A = 10^9/11 = 9,09 \cdot 10^7 \text{с}^{-1}$

Поскольку $\kappa = \sigma(308) \cdot \Delta N$, то инверсная заселенность ΔN верхнего рабочего уровня молекулы XeCl^* будет:

$$\Delta N = \kappa / \sigma(308) = 0,0085 / 7,286 \cdot 10^{-16} = 1,16 \cdot 10^{13} \text{см}^{-3} \quad (11)$$

Удельная мощность энерговклада в Ar/Xe/CCl₄ газовую смесь равна $w \approx I_0 \cdot E_0 / \pi \cdot r^2 \cdot R(E_0)$, где $I_0 = 5\text{А}$ - суммарное значение тока ($r=2\text{см}$ радиус электронного пучка на оси лазерной кюветы), $E_0=1,5 \cdot 10^5 \text{эВ}$ – энергия электронов пучка, $R(E_0) = 8,51\text{см}$ – пробег электрона в Ar/Xe/CCl₄ газовой смеси ($P_{\text{Ar}} = 1,5 \text{атм}$, $P_{\text{Xe}} = 12,5 \text{Торр}$, $\text{CCl}_4 = 0,036 \text{Торр}$). Подставляя эти значения, получаем: $w=7,05 \text{кВт/см}^3$. Отсюда КПД лазера будет равен:

$$\text{КПД} = \Delta N \cdot A \cdot \frac{h\nu}{w} \approx \frac{668}{7,05} \cdot 10^3 = 9,48 \% . \quad (12)$$

В связи с обнаруженной нами высокой эффективностью “жидких” газовых смесей (рис.6б), в данной работе были выполнены эксперименты по получению лазерной генерации на переходе эксимерной молекулы Xe_2Cl^* при накачке “жидкой” газовой смеси Хе-CCl₄ импульсным электронным пучком при тех же условиях, что и для В-Х полосы молекулы XeCl^* . Регистрация светового излучения производилась спектрометром MAYA-2000Pro с помощью оптоволоконного световода через выходное зеркало резонатора. Записывались оптические спектры излучения при отъюстированном резонаторе и при расстроенном резонаторе.

При использовании резонатора, настроенного на длину волны 486 нм, с пропусканием глухого зеркала 0,2% и 2,7% - выходного зеркала, было получено (2,5-3,5)-кратное усиление светового излучения в полосе $4^2\Gamma-1^2\Gamma$ молекулы Xe_2Cl^* (рис.14).

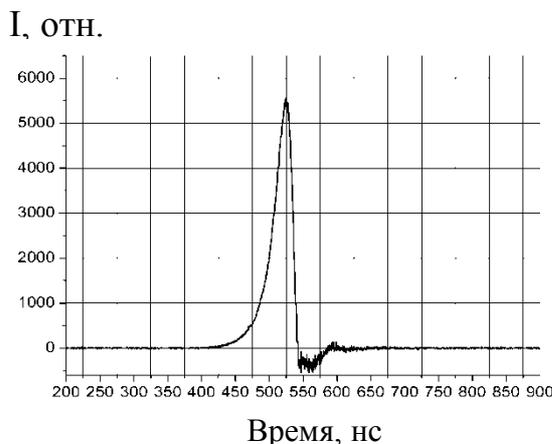


Рис.14. Спектр стимулированного излучения Xe-CCl_4 газовой смеси высокого давления при накачке импульсным пучком электронов с энергией 150кэВ при энерговкладах 0,004Дж/импульс. Состав смеси ; $\text{Xe- 2,5 атм, CCl}_4\text{- 50мТорр}$

При использовании других комплектов зеркал, имеющих высокий коэффициент отражения в диапазоне длин волн 430-480нм ($\sim 99,9\%$ для глухого зеркала и $\sim 98\%$ для выходного зеркала), было зарегистрировано в Ar-Xe-CCl_4 газовой смеси высокого давления стимулированное излучение в полосе излучения молекулы Xe_2Cl^* с длинами волн 412нм, 431нм, 451нм, 475нм, 497 нм, 510нм (рис.15а, б).

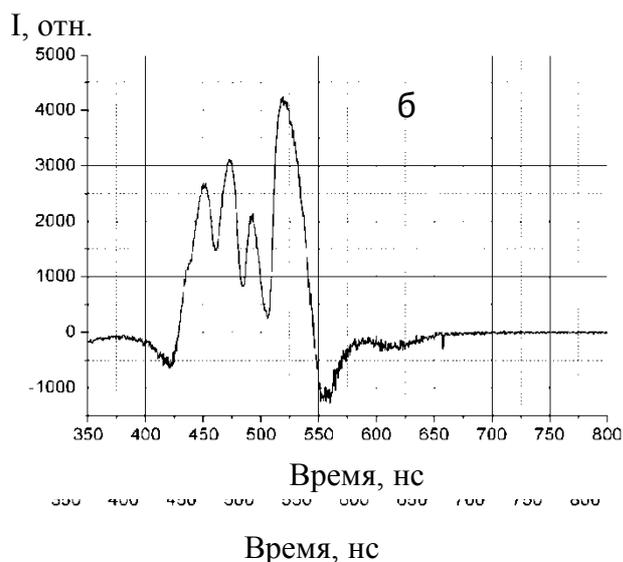
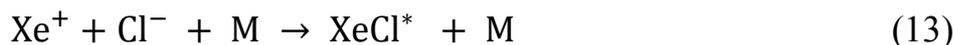


Рис.15. Спектр стимулированного излучения Ar-Xe-CCl_4 газовой смеси высокого давления при накачке импульсным пучком электронов с энергией 150 кэВ при энерговкладах

0,004Дж./имп. и разных выходных зеркалах оптического резонатора; а-пропускание зеркала 1,5% при 490, б- пропускание зеркала 1,7% при 455нм . Заднее зеркало -глухое (пропускание 0.1-0.2%) Состав газовой смеси для (а): Ar –1,5 атм, Хе –1атм, ССl₄ – 37,5 мТорр , для (б): Ar- 2атм, Хе- 0,5атм, ССl₄ -37,5мТорр.

Результаты исследований временных и спектральных характеристик люминесценции плотных газовых смесей Хе+ССl₄ различного состава с низким содержанием донора, выполненные в данной работе, указывают на преобладание каналов ион-ионной рекомбинации в механизме образования молекул ХеСl* и Хе₂Сl* (при различных давлениях Хе):



Здесь М=Ar, Хе – атомы буферного газа

Основные плазмохимические реакции, связанные с образованием этих молекул при накачке плотной Хе+ССl₄ газовой смеси заряженными частицами высокой энергии приведены в таблице 1. Используя эту модель, были выполнены временные расчеты характеристик плазмы, образующейся при накачке Хе+ССl₄ газовой смеси импульсным пучком быстрых электронов (E_e=150 кэВ) длительностью 5 нс.

На основе реакций таблицы 1 была составлена система дифференциальных уравнений баланса частиц для компонент плазмы Хе⁺, Хе^{*}, Хе₂⁺, Хе₂^{*}, ССl₄, Сl⁻, ХеСl^{*}, Хе₂Сl^{*} и электронов, дополненная уравнениями электронейтральности плазмы и баланса энергии электронов. Система дифференциальных уравнений решалась численно методом Рунге-Кутта с использованием программы Matlab 2008а. Расчеты были выполнены для различных начальных концентраций Хе и ССl₄ и условий накачки, соответствующих проведенным экспериментам. Это позволило сравнить результаты расчетов с экспериментом.

На рис.16 приведено сравнение результатов расчета формы импульса люминесценции на длине волны 308 нм (переход В-Х молекулы ХеСl^{*}) с экспериментальными данными для газовой смеси Хе = 1атм, ССl₄= 0,036 Торр. (рис.16а) и на длине волны 486нм (переход 4²Г-1²Г молекулы Хе₂Сl^{*}) (рис.16б). Наблюдается достаточно хорошее соответствие результатов расчета с экспериментом.

Таблица 1

Основные плазмохимические реакции при возбуждении плотной (Хе+ССl₄) газовой смеси заряженными частицами высокой энергии и образовании эксимерных молекул ХеСl* и Хе₂Сl*

β, e_β-электроны накачки и дельта электроны; E- энергия электронов накачки; w- энергия образования пары (Xe⁺+e⁻); N(Xe⁺), N(Xe^{}), E₁—число ионов Хе⁺, возбужденных атомов Хе^{*} и средняя энергия вторичных электронов,, образованных электроном накачки с энергией E; E_e, T_e— энергия и температура термализованных электронов.,*

№/ №	Реакции	Константы скоростей реакций	Литература
1	$\text{Xe} + \beta \rightarrow \text{Xe}^+ + e_0 + \beta$ $\text{Xe} + \beta \rightarrow \text{Xe}^* + \beta$ $\text{Xe} + e_0 \rightarrow \text{Xe}^+ + 2e$	$w = E/N(\text{Xe}^+) = 1,7 \cdot I = 20,6 \text{ эВ}$ $N(\text{Xe}^*) = 0,4 \cdot N(\text{Xe}^+) \text{ см}^{-3}$ $E_1 = 0,31 \cdot I = 3,76 \text{ эВ}$	[4]
2	$\text{Xe}^+ + 2 \text{Xe} \rightarrow \text{Xe}_2^+ + \text{Xe}$	$k_2 = (1,8-3,5) \cdot 10^{-31} \text{ см}^6/\text{с}$	[4]
3	$\text{Xe}^* + 2 \text{Xe} \rightarrow \text{Xe}_2^* + \text{Xe}$	$k_3 = (2,5-8,5) \cdot 10^{-32} \text{ см}^6/\text{с}$	[4]
4	$\text{Xe}_2^+ + e \rightarrow \text{Xe}^* + \text{Xe}$	$k_4 = 8,1 \cdot 10^{-5} T_e^{-0,6}$	[4]
5	$\text{CCl}_4 + e \rightarrow (\text{CCl}_4)^- \rightarrow \text{CCl}_3 + \text{Cl}^-$ $\text{CCl}_4 + e \rightarrow \text{CCl}_3 + \text{Cl}^-$	$\sigma = (1,2-1,4) \cdot 10^{-14} \text{ см}^2$ (для $E_e = 0,05 \text{ эВ}$) $k_5 = 7 \cdot 10^{-8} \text{ см}^3/\text{с}$, [для $T_e = 0,25 \text{ эВ}$]	[5] [8,9]
6	$\text{Xe}^+ + \text{Cl}^- + \text{Xe} \rightarrow \text{XeCl}^* + \text{Xe}$	$k_6 = 1,7 \cdot 10^{-6}$, при $[\text{Xe}] = 2,7 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-3}$	[7]
7	$\text{Xe}_2^+ + \text{Cl}^- + \text{Xe} \rightarrow \text{Xe}_2\text{Cl}^* + \text{Xe}$	$k_7 = 1,6 \cdot 10^{-6}$, при $[\text{Xe}] = 2,7 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-3}$	[7]
8	$\text{Xe}^* + \text{CCl}_4 \rightarrow \text{XeCl}^*(\text{B}, \text{C}) + \text{CCl}_3$		
9	$\text{Xe}^m + \text{CCl}_4 \rightarrow \text{XeCl}^*(\text{B}) + \text{CCl}_3$		
10	$\text{Xe}_2^* + \text{CCl}_4 \rightarrow \text{Xe}_2\text{Cl}^* + \text{CCl}_3$		
11	$\text{Xe}_2^* \rightarrow 2 \text{Xe} + h\nu (172 \text{ нм})$	$A_{11} = 2,10^8 \text{ с}^{-1} (\lambda = 172 \text{ нм}), (0^+_{\text{u}})$ $A_{11} = 10^7 \text{ с}^{-1} (\lambda = 147 \text{ нм}), (1_{\text{u}})$	
12	$\text{XeCl}^* \rightarrow \text{Xe} + \text{Cl} + h\nu (308 \text{ нм})$	$\tau_{12} = 11 \text{ нс}$ $\tau_{12} = 33 \text{ нс}$	[1] наст. работа ота
13	$\text{XeCl}^*(\text{B}, \text{C}) + 2 \text{Xe} \rightarrow \text{Xe}_2\text{Cl}^* + \text{Xe}$	$k_{13} = (1-0,8) \cdot 10^{-30} \text{ см}^6/\text{с}$	[6]
14	$\text{Xe}_2\text{Cl}^* \rightarrow 2 \text{Xe} + \text{Cl} + h\nu (486 \text{ нм})$	$\tau_{14} = 245 \text{ нс}; 135 \text{ нс}$ $\tau_{14} = 346 \text{ нс}$	[2,3] наст. работа ота
15	$\text{Xe}_2\text{Cl}^* + \text{CCl}_4 \rightarrow \text{продукты}$	$k_{15} = 8,38 \cdot 10^{-10} \text{ см}^3/\text{с}$ $k_{15} = (5-7) \cdot 10^{-10} \text{ см}^3/\text{с}$	наст. работа ота [3]
16	$\text{XeCl}^* + \text{CCl}_4 \rightarrow \text{продукты}$	$k_{16} = 2,46 \cdot 10^{-9} \text{ см}^3/\text{с}$	наст. работа ота
17	$\text{XeCl}^* + \text{Xe} \rightarrow \text{продукты}$	$k_{17} < 4 \cdot 10^{-12} \text{ см}^3/\text{с}$	наст. работа ота
18	$\text{Xe}_2\text{Cl}^* + \text{Xe} \rightarrow \text{продукты}$	Тушение не обнаружено	наст. работа ота

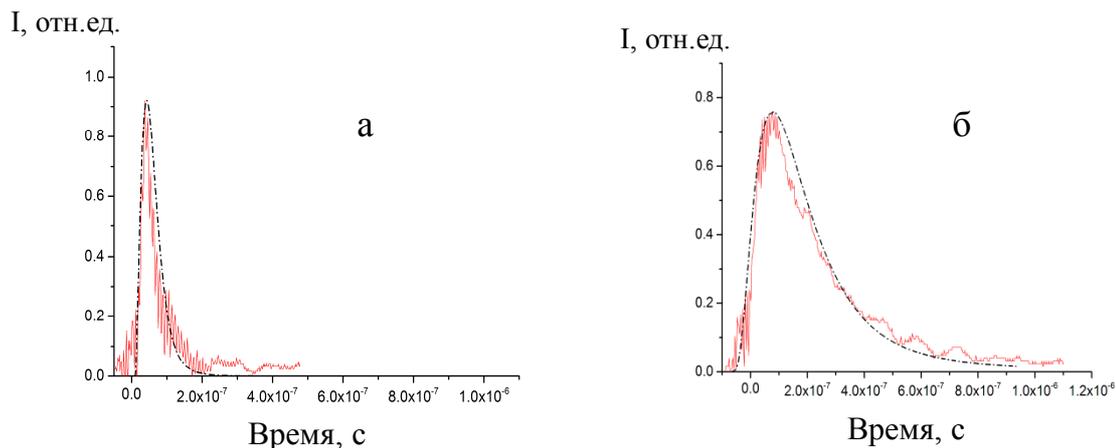


Рис. 16. Сравнение результатов расчета формы импульса люминесценции на длине волны 308 нм (а) (переход В-Х молекулы XeCl^*) и 486 нм (б) (переход $4^2\Gamma-1^2\Gamma$ молекулы Xe_2Cl^*) с экспериментальными данными для газовой смеси Хе - 1атм, CCl_4 - 0,036 Торр. Сплошная линия – эксперимент, пунктирная линия – расчет.

Форма импульса люминесценции зависит от содержания CCl_4 в смеси: с ростом концентрации CCl_4 передний и задний фронты импульса люминесценции становятся круче, поскольку увеличивается скорость образования отрицательных ионов Cl^- и возрастает скорость реакций (15) и (17). Однако, с ростом концентрации CCl_4 общее количество ионов Cl^- , способных образовывать эксимерные молекулы, не увеличивается (зависит от общего количества свободных электронов). В то же время рост концентрации CCl_4 приводит к увеличению тушения эксимерных молекул и снижению общего количества выходных фотонов.

Результаты расчета формы импульса люминесценции на длине волны 308 нм (переход В-Х молекулы XeCl^*) и 486 нм (переход $4^2\Gamma-1^2\Gamma$ молекулы Xe_2Cl^*) в зависимости от концентрации CCl_4 в Хе- CCl_4 газовой смеси приведены на рис 17и 18.

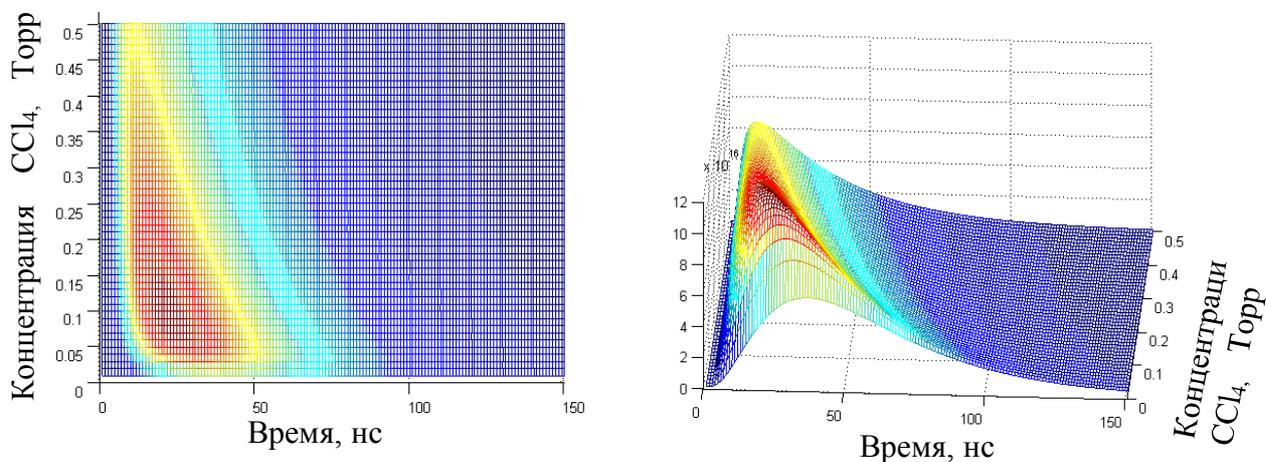


Рис.17. Изменение формы импульса люминесценции на длине волны 308 нм (переход В-Х молекулы XeCl^*) в зависимости от концентрации CCl_4 в газовой смеси ($\text{Xe} + \text{CCl}_4$) при накачке импульсом электронов с энергией 150кэВ и длительностью 5нс Давление Хе-1атм. (расчетные значения)

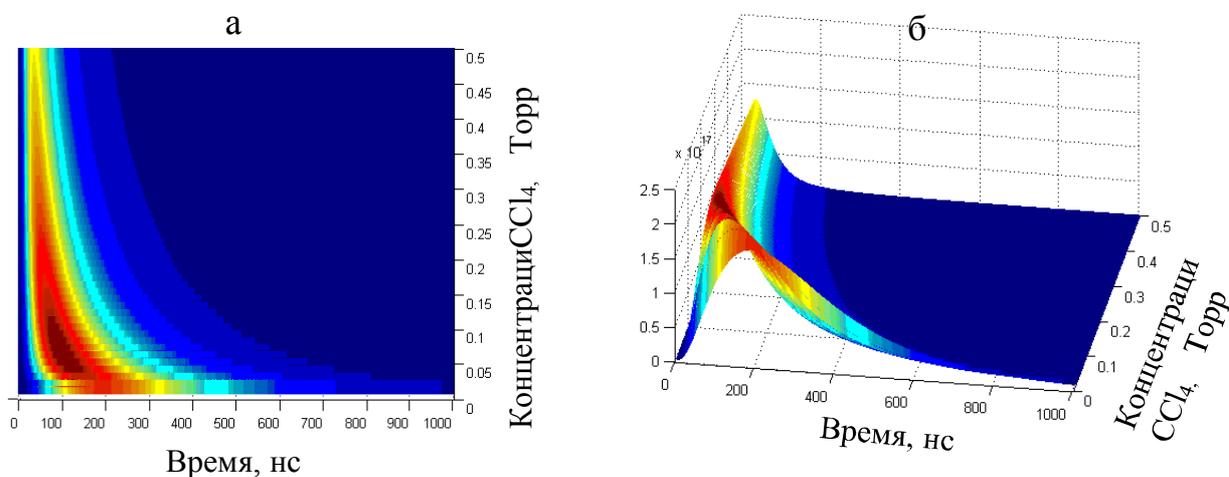


Рис.18. Изменение формы импульса люминесценции(б) на длине волны 486нм (переход $4^2\text{Г}-1^2\text{Г}$ молекулы Xe_2Cl^*) в зависимости от концентрации CCl_4 в газовой смеси ($\text{Xe} + \text{CCl}_4$) при накачке импульсом электронов с энергией 150кэВ и длительностью 5нс. Давление Хе - 1атм.(расчетные значения). а-проекция в плоскости ХУ

В четвертой главе рассматривается влияние примесей молекулярных газов (вода, воздух, азот) на люминесценцию смесей инертных газов He, Ne, Ar, Kr, Xe. Опасность загрязнения активной среды лазера примесями воздуха или воды связана с тем, что молекулы кислорода и воды сильно захватывают электроны, образуя отрицательные ионы O_2^- и H_2O^- . Это сильно уменьшает концентрацию электронов в плазме и изменяет характер рекомбинационных процессов.

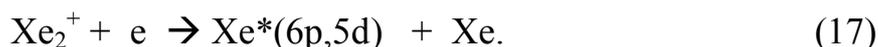
Используя импульсный пучок быстрых электронов, были измерены спектрально-временные характеристики люминесценции чистого неона и неон-воздушной газовой смеси с малым содержанием воздуха. Молекулы воздуха вызывают тушение неоновых линий и одновременно в спектре неон-воздушной смеси появляется группа ярких (В-Х) линий иона N_2^+ с длинами волн 391,4нм, 427,8нм, 470,9нм, и несколько более слабых линий, связанных с молекулой N_2 , с длинами волн 337,1нм, 357,7нм, 380,5нм. Наличие в спектрах неон-воздушных смесей ярких молекулярных полос азота показывает, что основные процессы тушения люминесценции Ne воздухом связаны с молекулами N_2 . Из измеренных временных осциллограмм ($\lambda=585,2$ нм, переход $2p_1-1s_2\text{NeI}$) следует, что происходит прямое возбуждение уровней конфигурации $2p^53p$ NeI быстрыми частицами и δ -электронами ионизационного каскада и возникает короткоживущая люминесценция с временами высвечивания, близкими к радиационным, и долгоживущая люминесценция, определяемая реакцией

диссоциативной рекомбинации молекулярного иона Ne_2^+ . Добавление воздуха практически не влияет на процессы прямого возбуждения $3p'[1/2]_0$ уровня NeI ($\lambda=585,2\text{nm}$), но вызывает сильное тушение медленной компоненты люминесценции за счет влияния примесного газа на ионный канал накачки. Изменение световыхода неон-воздушной смеси вследствие процессов тушения люминесценции молекулярными примесями могут быть представлены в виде эмпирической формулы

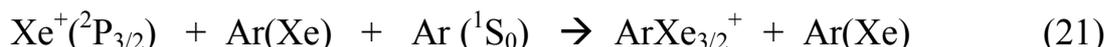
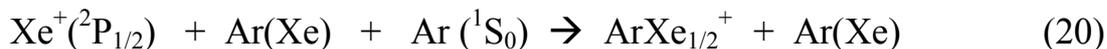
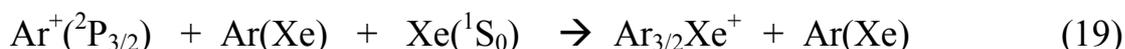
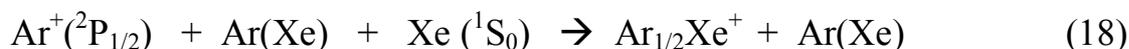
$$\alpha(585,2 \text{ nm}) = C_j / C_0 = (1 + 2 \cdot \sqrt{p})^{-1} \quad (15)$$

Здесь C_j и C_0 – площади под кривыми высвечивания загрязненного и чистого неона; p - парциальное давление воздуха в неоне, Торр. Эта формула справедлива для давления неона 760Торр и $\lambda= 585,2\text{nm}$. Для других давлений газа коэффициент α возможно будет несколько отличаться от указанного значения.

Были проведены экспериментальные исследования влияния малых примесей воды на люминесцентные характеристики чистого Ar и Ar-Xe смесей высокого давления при возбуждении импульсным пучком быстрых электронов с энергией 150 кэВ и длительностью ~ 5 нс. Наличие молекул воды в чистом Ar и Ar-Xe смеси приводит к возбуждению люминесценции молекулярной полосы OH^* ($\lambda= 308 \text{ nm}$) и увеличению её интенсивности с ростом концентрации воды в газовой среде. Одновременно при малых концентрациях воды ($\sim 0,036$ Торр) происходит сильное тушение 4p-4s линий ArI и 6p-6s линий XeI. Это связано с рекомбинационным характером заселения этих уровней и объясняется уменьшением концентрации электронов в плазме из-за прилипания к молекулам воды:



При накачке плотных Ar-Xe смесей, содержащих большое количество Xe ($\geq 10\%$), происходит эффективное образование молекул $(\text{ArXe})^+$ при тройных соударениях с ионами Ar^+ или Xe^+ :



Переходы между этими возбужденными состояниями сопровождаются испусканием с молекулярных полос с длинами волн 329нм, 506,4нм, из которых наиболее интенсивной является полоса при 329нм:



Сравнение временных осциллограмм люминесценции молекул $\text{OH}^*(A^2\Sigma^+)$ на длине волны 308нм и $\text{Ar}_{1/2}\text{Xe}^+$ на длине волны 329нм показывает, что образование молекул OH^* происходит со значительной задержкой относительно импульса накачки, в то время как молекула $\text{Ar}_{1/2}\text{Xe}^+$ образуется за значительно более короткие времена ($\sim 40\text{нс}$).

Было измерено радиационное время жизни $A^2\Sigma^+(v'=0)$ уровня молекулы OH^* , равное 227нс, константа тушения этой полосы молекулами воды в Ar-Xe смесях зависит от концентрации атомов Xe и равна $1,14 \cdot 10^{-9} \text{см}^3/\text{с}$ и $6,6 \cdot 10^{-10} \text{см}^3/\text{с}$ в Ar-Xe смесях с содержанием Xe 0,2Торр и 0,4Торр. Для молекулы $\text{Ar}_{1/2}\text{Xe}^+$ измеренное радиационное время жизни полосы 329нм составило 33нс (смесь Ar-750Торр, Xe- 152Торр) и константа тушения водой равна $4,8 \cdot 10^{-9} \text{см}^3/\text{с}$.

Основные результаты работы

1. Впервые экспериментально обнаружено, что в газовых смесях Xe- CCl_4 , Ar-Xe- CCl_4 , Kr-Xe- CCl_4 с низким содержанием CCl_4 ($\sim 50\text{мТорр}$) при накачке заряженными частицами высокой энергии происходит эффективное образование эксимерных молекул XeCl^* и Xe_2Cl^* , превышающее в 5-10 раз эффективность образования этих молекул в смесях традиционного состава ($P_{\text{cc14}} \sim 1\text{Торр}$). Показано, что эффект связан с устранением тушащего действия молекул CCl_4 .

2. Измерены времена высвечивания и константы столкновительного тушения молекулами CCl_4 В-состояния молекулы XeCl^* и $4^2\Gamma$ -состояния молекулы Xe_2Cl^* . Эти константы оказались равными 33нс, $2,46 \cdot 10^{-9} \text{см}^3/\text{с}$ и 346нс, $8,38 \cdot 10^{-10} \text{см}^3/\text{с}$ соответственно.

3. Разработана и создана экспериментальная установка для изучения спектральных, временных и генерационных характеристик эксимерных сред на основе смесей инертных газов с галогеносодержащими соединениями, возбуждаемых импульсным пучком быстрых электронов с энергией 150кэВ, амплитудой тока пучка 5А и длительностью импульса 5нс. Спектральный диапазон измеряемых длин волн – 200-1200нм, временной измеряемый диапазон – 5нс-2 мкс.

4. Рассмотрены основные физические процессы образования эксимерных молекул при накачке заряженными частицами высокой энергии. Показано, что основным каналом образования эксимерных молекул XeCl^* и Xe_2Cl^* являются реакции ион-ионной рекомбинации с участием положительных ионов Xe^+ и Xe_2^+ и отрицательных ионов Cl^- .

5. Проведены нестационарные расчеты параметров плазмы, образующейся в Xe- CCl_4 плотной газовой смеси при возбуждении импульсным пучком быстрых электронов. Результаты расчетов хорошо согласуются с временными

измерениями формы импульсов люминесценции эксимерных молекул XeCl^* ($\lambda=308$ нм) и Xe_2Cl^* ($\lambda=486$ нм).

6. В плотных Xe/CCl_4 и $\text{Ar}/\text{Xe}/\text{CCl}_4$ газовых смесях с низким содержанием CCl_4 при накачке импульсным пучком быстрых электронов с энергией 150 кэВ, длительности и амплитуде импульса тока накачки – 5нс и 5А в кювете длиной 4 см была получена квазинепрерывная генерация лазерного излучения в резонаторе с пропусканием выходного зеркала 2,7% на $\text{V} \rightarrow \text{X}$ переходе молекулы XeCl^* ($\lambda=308$ нм) с коэффициентом усиления $\alpha = 0,0085 \text{ см}^{-1}$ и КПД $\approx 10\%$.

В этих же газовых смесях при использовании зеркал с коэффициентами отражения $\sim 98\%$ в интервале длин волн 420-600 нм получено 2,5-3,5 кратное усиление спонтанного излучения $4^2\text{Г}-1^2\text{Г}$ полосы молекулы Xe_2Cl с длинами волн 412нм, 431нм, 451 нм ,475 нм,497 нм,510нм.

7. Проведены исследования влияния примесей молекулярных газов (вода, воздух, азот) на люминесценцию смесей инертных газов He, Ne, Ar, Kr, Xe, возбуждаемых пучком быстрых электронов. Измерены времена высвечивания молекул OH^* , $\text{Ar}_{1/2}\text{Xe}^+$ и константы столкновительного тушения этих возбужденных состояний молекулами воды.

Список цитируемой литературы

1. Shneider R. T., Thom K. / Fission in uranium plasmas and nuclear-pumped lasers. // Nuclear Technology, 1975, V.27, P. 34-50.
2. Явелов Б.Е. / Лазеры с ядерной накачкой. // Атомная техника за рубежом, 1978, № 6, с.14-18.
3. Загидулин А.В., Бочков А.В., Мироненко В.В., Софиенко Г.С. / 500-джоулевый лазер с ядерной накачкой. // Письма в ЖТФ., т.38, Вып.23, С.31- 39.
4. Hays G. N., McArthur D. A., Neal D. R. and Rice J. K. / Gain measurements near 351 nm in $^3\text{He}/\text{Xe}/\text{NF}_3$ mixtures excited by fragments from the $^3\text{He}(n, p)^3\text{H}$ reaction // Appl.Phys.Lett., 1986, Vol.49, № 7, P.363-365.
5. Мавлютов А.А., Миськевич А.И. / Эксимерный лазер с ядерной накачкой с длиной волны генерации 308 нм // Письма в ЖТФ. 1996. Т.22. № 8. С.48-52.
6. Wilson J.W. and Shapiro A. / Nuclear-induced excimer fluorescence // J.Appl. Phys., 1980, V. 5, № 5, P. 2387-2393.
7. Marowsky G., Sauerbrey R., Tittel F.K., Wilson Jr. W.L. / Effect of chlorine donors on the formation and quenching of the triatomic excimer Xe_2Cl^* . // Chemical Physics Letters, 1983, V.98, Issue 2, P.167-171.
8. Thomas H. Johnson, Harry E. Cartland, Thomas C. Genoni, and Allen M. Hunter. / A comprehensive kinetic model of the electron - beam - excited xenon chloride laser // J. Appl. Phys., 1989, V.66, P.5707

9. Kannari F., Kimura W. D. and Ewing J. J. / Comparison of model predictions with detailed species kinetic measurements of XeCl^* laser mixtures. // J. Appl. Phys., 1990, V.68, P.2615

Список публикаций по теме диссертации

1. Миськевич А.И., Го Цзиньбо / Влияние примесей воздуха на люминесценцию чистого неона. // Оптика и спектроскопия, 2012, том 113, № 6, с. 627–634.
2. Миськевич А.И., Го Цзиньбо / Люминесцентные характеристики Xe_2Cl^* эксимерных молекул при накачке импульсным электронным пучком плотных ($\text{Xe} + \text{CCl}_4$) газовых смесей. // Квантовая электроника, 2013, том 43. №6, с.513-519.
3. Миськевич А.И., Го Цзиньбо / Генерация и вынужденное излучение на переходах эксимерной молекулы Xe_2Cl^* при накачке “жидких” $\text{Xe}-\text{CCl}_4$ и $\text{Ar}-\text{Xe}-\text{CCl}_4$ газовых смесей импульсным электронным пучком. // Письма в ЖТФ, 2013, том 39, № 8, с.33–39.
4. Миськевич А.И., Лю Тао, Го Цзиньбо Тр. / Спектроскопический комплекс для изучения процессов возбуждения активных сред эксимерных и парометаллических ионноэмиссионных лазеров с ядерной накачкой. // Труды научной сессии НИЯУ МИФИ-2010. Т.ІУ. С.200-203.
5. Миськевич А.И., Го Цзиньбо, Лю Тао / Спектроскопический комплекс для изучения процессов возбуждения активных сред эксимерных и парометаллических ионноэмиссионных лазеров с ядерной накачкой. // Сборник научных трудов “Научная сессия МИФИ 2010”, т.2, с.195.
6. Миськевич А.И., Го Цзиньбо / Кинетика заселения уровня $3p[1/2]_0$ при возбуждении чистого Ne высокого давления импульсным пучком быстрых электронов. // Сборник научных трудов “Научная сессия МИФИ 2011”, т.2, с.81.
7. Миськевич А.И., Го Цзиньбо / Люминесцентные характеристики $\text{Ar}-\text{Xe}$ и $\text{Kr}-\text{Xe}$ газовых сред при возбуждении заряженными частицами высокой энергии. // Сборник научных трудов “Научная сессия МИФИ 2012”, т.2.с.179.
8. Миськевич А. И., Го Цзиньбо / Вынужденное излучение на переходах эксимерной молекулы Xe_2Cl^* при накачке жидких $\text{Xe}-\text{CCl}_4$ и $\text{Ar}-\text{Xe}-\text{CCl}_4$. // Сборник научных трудов “Научная сессия МИФИ 2013”, т.2.с.160.
9. Миськевич А.И., Liu Tao, Guo Jinbo / Bombardment-induced light emission under sputtering of solid states and nuclear-pumped lasers. // Конференция DAAD-2009, Москва, МИФИ, 6-7 ноября 2009г.