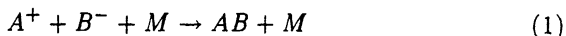


02; 04  
©1993ТРОЙНАЯ ИОН-ИОННАЯ РЕКОМБИНАЦИЯ  
В ГАЗОВЫХ СМЕСЯХ*Н.Л.Александров, Д.А.Новицкий*

Процесс тройной ион-ионной рекомбинации



имеет почти вековую историю исследований. Являясь одним из основных каналов гибели заряженных частиц в газе, он оказывается важным при накачке эксимерных лазеров [1,2], в некоторых задачах экологии [3]; им определяется концентрация ионов в средней и нижней атмосфере [4].

Экспериментальных данных по скорости этого процесса относительно мало, что объясняется изменением состава ионов и усложнением их идентификации с ростом давления газа. Поэтому основным источником информации по скорости процесса (1) является теория, причем наиболее надежные данные получаются в рамках метода Монте-Карло (см., например, [5]). Но расчеты этим методом трудоемки и выполнены для малого числа систем и узкой области параметров. Скорость же процесса (1) зависит от многих исходных данных: вида частиц  $A^+$ ,  $B^-$ ,  $M$ , давления, температуры газа и ионов. Из-за этого в практических приложениях (например, при изучении кинетических процессов в эксимерных лазерах) более приняты простые подходы [6,7], в которых константа скорости представляется в виде аналитических формул. По этим формулам выполнены расчеты [8,9] для основных видов ионов и третьих тел, встречающихся в активных средах эксимерных лазеров на галогенидах инертных газов.

Цель данного сообщения состоит в указании на то, что скорость (1) может немонотонным образом зависеть от состава газа. Эту зависимость нельзя получить при усреднении данных по скорости процесса отдельно для каждой третьей частицы, которые обычно являются конечным результатом расчетов (см., например, [8,9]). Более того, константа скорости есть характеристика процесса для всей газовой смеси, а не только для конкретного третьего тела.

Перечисленные утверждения связаны с тем, что процесс (1) является строго элементарным (то есть происходящим с участием всего трех частиц) только в пределе малых давлений, когда константа скорости, определяемая как

$$\frac{dn_n}{dt} = -kn_n n_p,$$

равна  $k = k_I N$ . Здесь  $n_n$ ,  $n_p$  и  $N$  — плотности отрицательных и положительных ионов, а также нейтральных частиц. Этот случай

впервые был рассмотрен Томсоном. В пределе высоких давлений, впервые изученном Лавжевенем,  $k = k_L = 4\pi(\mu_n + \mu_p) \sim N^{-1}$ , где  $\mu_n$  и  $\mu_p$  — подвижности отрицательных и положительных ионов.

Указанные закономерности объясняются следующим образом (см., например, [10-12]). Процесс (1) условно происходит в две стадии. На первой разноименные ионы должны подойти на расстояние  $\sim \epsilon^2/T$  ( $T$  — температура газа). На второй стадии один из ионов в поле другого иона сталкивается с нейтральной частицей и отдает ей часть своей энергии, в результате чего ионы оказываются связанными. При малых давлениях лимитирующей является вторая стадия и  $k \sim N$ . В другом предельном случае скорость процесса определяется скоростью сближения ионов за счет дрейфа или диффузии и  $k \sim N^{-1}$ .

В случае промежуточных давлений константа скорости может быть записана как [12] (см. также [6,8,11]):

$$k^{-1} = (k_T N)^{-1} + k_L^{-1}. \quad (2)$$

В газовых смесях константа скорости процесса (1) легко находится в пределах больших и малых давлений. Для бинарной смеси тогда выполняются соотношения

$$k_T = k_{T1}\delta + k_{T2}(1 - \delta), \quad (3)$$

$$k_L^{-1} = k_{L1}^{-1}\delta + k_{L2}^{-1}(1 - \delta), \quad (4)$$

где  $\delta$  — объемная доля первого компонента, индексы 1 и 2 относятся к константам скорости в первом и во втором чистых газах. Выражение (4) следует из закона Бланка для подвижности ионов, отражающего зависимость  $\mu_n$  и  $\mu_p$  от всех нейтральных компонентов смеси. Тем самым и константа скорости процесса (1) оказывается характеристикой всей смеси. При этом результаты расчетов ([8,9] и так далее) ее величины в чистых газах могут быть использованы для газовых смесей лишь в пределах большого и малого давлений. В промежуточном же случае расчеты должны повторяться с использованием (2)–(4).

Согласно (3), (4) в предельных случаях Томсона или Лавжевена  $k(\delta)$  — монотонная функция. Покажем, что при промежуточных давлениях она может иметь максимум. Подстановка (3), (4) в (2) и дифференцирование по  $\delta$  дает значение

$$\delta_* = \left[ \sqrt{k_{L1}k_{L2}(k_{T1} - k_{T2})N/(k_{L2} - k_{L1})} - k_{T2}N \right] / (k_{T1} - k_{T2})N, \quad (5)$$

при котором наблюдается максимум. Необходимыми условиями его существования являются неравенства

$$k_{T1} > k_{T2}, \quad k_{L1} < k_{L2} \quad (6)$$

(или одновременное выполнение обратных неравенств и замена  $\delta$  на  $1 - \delta$ ). Достаточное условие  $0 < \delta_* < 1$  записывается в виде

$$k_{T2}^2 N < k_{L1}k_{L2}(k_{T1} - k_{T2})/(k_{L2} - k_{L1}) < k_{T1}^2 N. \quad (7)$$

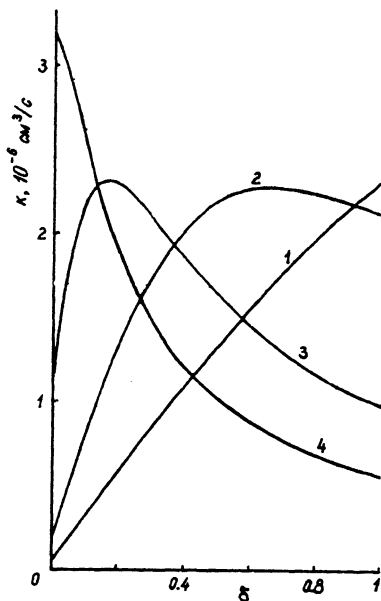


Рис. 1. Константа скорости процесса (8) в смеси  $\text{Ag}:\text{He}=\delta:(1-\delta)$ , вычисленная согласно [6], [8]. 1 — давление 1 атм, 2 — 3, 3 — 8, 4 — 14.

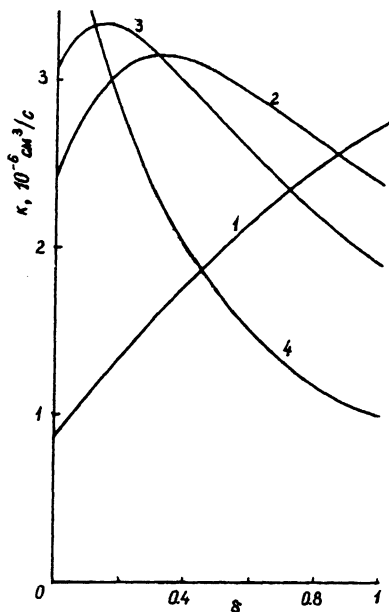
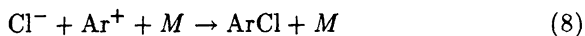


Рис. 2. Константа скорости процесса (8) в смеси  $\text{Ag}:\text{He}=\delta:(1-\delta)$ , вычисленная согласно [7]. 1 — давление 1 атм, 2 — 3, 3 — 4, 4 — 8.

Появление максимума в зависимости  $k(\delta)$  объясняется следующим образом. Пусть при  $\delta = 0$  скорость процесса определяется передачей энергии от иона к нейтральной частице в поле другого иона (случай Томсона). Тогда при выполнении условий (6) с увеличением  $\delta$  константа скорости, приблизительно равная  $k_T N$ , растет. Значение  $k_L$  при этом падает. В результате при некотором значении  $\delta$  может стать определяющей первая стадия — дрейф и диффузия ионов навстречу друг другу (случай Ланжевена), где  $k \approx k_L$ . Тогда, согласно (6), дальнейшее увеличение  $\delta$  будет приводить к уменьшению скорости процесса, то есть в зависимости  $k(\delta)$  должен наблюдаться максимум. Интересно, что появление минимума здесь невозможно.

Для иллюстрации описанных эффектов в настоящей работе был проведен расчет константы скорости процесса



при температуре  $T = 300$  К в смесях Ag:He, используемых в экспериментальных лазерах. Поскольку  $k_T \sim \delta_{ia}$  и  $k_L \sim \delta_{ia}^{-1}$  [ $\delta_{ia}$  — сечение рассеяния иона на атоме), то выполнение условий (6) здесь обеспечивается малой (по сравнению с Ag) величиной поляризуемости и сечения  $\delta_{ia}$  для атомов He. Значения подвижностей  $\mu_p$  и  $\mu_n$ , необходимые для расчета, брались из [13,14]. Результаты расчета в рамках подходов [6], [8] и [7] приведены соответственно на рис. 1 и 2. Отчетливый максимум получается в области давлений, реализуемых в эксимерных лазерах. В пределе больших и малых давлений он пропадает. Указанный эффект необходимо учитывать при моделировании ионной кинетики в газовых смесях, в том числе в активных средах эксимерных лазеров.

Следует заметить, что результаты на рис. 1 и 2 существенно отличаются друг от друга для смесей, богатых He. Более предпочтительными являются результаты на рис. 2, так как согласно эксперименту [15], подход [6], [8] в отличие от [7] в He не дает заниженные значения константы скорости.

### Список литературы

- [1] *Эксимерные лазеры* / Под ред. Ч.Роудза. М.: Мир, 1981. 245 с.
- [2] Баранов В.Ю., Борисов В.М., Степанов Ю.Ю. Электроразрядные эксимерные лазеры на галогенидах инертных газов. М.: Энергоатомиздат, 1988. 216 с.
- [3] Александров Н.Л., Ваграмеев К.А., Добкин С.В., Сом Э.Е. // Письма в ЖТФ. 1992. Т. 18. Вып. 23. С. 73-77.
- [4] Брасье Г., Соломон С. Аэрономия средней атмосферы. Л.: Гидрометеоиздат, 1987. 413 с.
- [5] Morgan W.L., Bardsley J.N., Lin J., Whitten B.L. // Phys. Rev. A. 1982. V. 26. N 3. P. 1696-1703.
- [6] Flannery M.R. // Chem. Phys. Lett. 1978. V. 56. N 1. P. 143-147.
- [7] Bates D.R., Mendis I. // J. Phys. B. 1982. V. 15. N 12. P. 1949-1956.
- [8] Flannery M.R., Yang T.P. // Appl. Phys. Lett. 1978. V. 32. N 5. P. 327-329; N 6. P. 356-357; V. 33. N 7. P. 574-576.
- [9] Christov Ch.G., Lyutskanov V.L., Tomov I.V. // J. Phys. B. 1981. V. 14. N 12. P. 2053-2057.
- [10] Смирнов Б.М. Отрицательные ионы. М.: Атомиздат, 1978. 176 с.
- [11] Flannery M.R. // Atomic processes and applications. / Eds. P.G.Burke and B.L.Moisevitch. Amsterdam: North-Holland Publishing Company, 1976. P. 408-466.

- [12] *Фланнери М.Р.* Газовые лазеры / Под ред. И.Мак-Даниэля и У.Нигэна. М.: Мир, 1986. С. 177-215.
- [13] *Ellis H.W., Pai R.Y., McDaniel E.W., Mason E.F., Viehland L.A.* // *Atom. Data Nucl. Data Tables*. 1976. V. 17. N 3. P. 177-210.
- [14] *Ellis H.W., McDaniel E.W., Albritton D.L., Viehland L.A., Lin S.L., Mason E.A.* // *Atom. Data Nucl. Data Tables*. 1978. V. 22. N 3. P. 179-217.
- [15] *Lee H.S., Johnsen R.* // *J. Chem. Phys.* 1990. V. 93. N 7. P. 4868-4873.

Московский инженерно-физический  
институт

Поступило в Редакцию  
19 мая 1993 г.

---