

01

Влияние плотности атомов буферного газа на форму эксимерной полосы $\text{HgXe}(A^3O^+) \rightarrow \text{HgXe}(X^1O^+)$

© А.З. Девдариани^{1,3}, А.Л. Загребин², Н.А. Крюков¹,
М.Г. Леднев², Н.А. Тимофеев¹

¹ Санкт-Петербургский государственный университет,
198504 Санкт-Петербург, Россия

² Балтийский государственный технический университет „ВОЕНМЕХ“ им. Д.Ф. Устинова,
190005 Санкт-Петербург, Россия

³ Российский государственный педагогический университет им. А.И. Герцена,
191186 Санкт-Петербург, Россия

e-mail: snbrn2@yandex.ru, alzagrebini@yandex.ru, nkryukov@yandex.ru, m_lednev@rambler.ru, niktimof@yandex.ru

Поступила в редакцию 24.12.2018 г.

В окончательной редакции 24.12.2018 г.

Принята к публикации 09.01.2019 г.

Проанализированы причины расхождений в экспериментальных данных по форме длинноволновых континуумов вблизи резонансной линии $6^3P_1 \rightarrow 6^1S_0$ атома ртути в атмосфере ксенона, полученных разными авторами. Расчеты спектральных профилей для предельных случаев высокой и низкой плотностей атомов буферного газа позволяют сделать вывод о том, что расхождения вызваны, главным образом, зависимостью скоростей трехчастичной рекомбинации и релаксационных процессов от плотности ксенона. При различных скоростях этих процессов формируются разные типы неравновесной или почти равновесной (при высоких концентрациях ксенона) колебательно-вращательной заселенности состояний эксимерной молекулы $\text{HgXe}(A^3O^+)$, что и влияет на спектральные профили излучения.

DOI: 10.21883/OS.2019.05.47648.369-18

Введение

Оптическая спектроскопия эксимеров была инициирована работами по созданию эксимерных лазеров [1]. Для таких молекул (M^*X), составленных при больших межатомных расстояниях из атома металла M^* в нижних излучающих состояниях и атома инертного газа X в основном состоянии, особый интерес представляет формирование и излучение эксимерных полос в крыльях линий паров металлов в видимой или УФ, ВУФ и ИК областях спектра [2]. Типичный пример — эксимерная полоса, которая формируется при переходе $\text{HgXe}(A^3O^+) \rightarrow \text{HgXe}(X^1O^+)$. Несмотря на сравнительную доступность спектра для экспериментального изучения, опубликованные данные [3–5] при температуре $T \sim 300$ К не только различаются, но и отсутствуют убедительное обсуждение причин расхождений.

В настоящей работе показано, что расхождения обусловлены в основном зависимостью скоростей рекомбинационных и релаксационных процессов от концентрации атомов ксенона, что приводит к формированию различных (при разных концентрациях атомов буферного газа) типов неравновесной или почти равновесной заселенности колебательно-вращательных состояний эксимерной молекулы $\text{HgXe}(A^3O^+)$.

Предварительные результаты работы доложены на 23-й Международной конференции по форме спектральных линий [6].

Профили крыльев спектральных линий эксимеров

Форма линии оптического перехода между двумя квази-молекулярными состояниями, которые формируются при столкновениях атомов, определяется зависимостью потенциалов взаимодействия в начальном и конечном состояниях от межатомного расстояния R [7]. Для расчетов этих характеристик были развиты полуэмпирические методы описания взаимодействия атомов [8,9].

В случае эксимеров спектр полосы в общем случае формируется переходами из связанных (b) и квазисвязанных (qb) состояний движения атомов, а также переходами (c) из состояний свободного движения атомов в терме начального состояния. Поэтому полный вклад соответствующих переходов в спектральное распределение интенсивности молекулярной полосы помимо термов определяется также и заселенностью начальных состояний.

В зависимости от экспериментальных условий между начальными состояниями устанавливается (или отсутствует) термодинамическое равновесие, поэтому вычислить в общем виде форму полосы для произвольного давления буферного газа и произвольной температуры не представляется возможным. В важном частном случае максвелл-больцмановского распределения атомов профиль крыла спектральной линии может быть

представлен [10] в виде

$$I(\lambda) \sim \frac{1}{\lambda^3} \frac{D^2(R_c)R_c^2}{\left| \frac{d}{dR} \Delta U_{if}(R_c) \right|} \times \{ \Phi_b(T, R_c) + \Phi_{qb}(T, R_c) + \Phi_c(T, R_c) \},$$

где $D(R_c)$ — дипольный момент оптического перехода, R_c — так называемая кондоновская точка, которая определяется из условия

$$\Delta U_{if}(R_c) = U_i(R_c) - U_f(R_c) = 2\pi\hbar c/\lambda,$$

$U_{i,f}$ — потенциалы взаимодействия атомов в начальном возбужденном и конечном основном состояниях, отсчитанные от энергии невзаимодействующих атомов в основных состояниях, $\Phi_{b,qb,c}$ — вклады соответствующих состояний движения атомов.

Профиль крыла спектральной линии в предельных случаях высокого и низкого давлений буферного газа

Отсутствие данных по элементарным процессам, которые участвуют в формировании заселенностей различных состояний эксимера, не позволяет вычислить спектральные профили, определенные при различных экспериментальных условиях [3–5]. Тем не менее, возможно получить представление о влиянии заселения состояний с помощью подходов, использованных в [10–12] для оценки влияния плотности буферного газа на спектры возбужденных квазимолекул.

С этой целью выполнен расчет спектральных профилей в двух предельных случаях: для высокой концентрации атомов буферного газа, когда заселение состояний эксимера равновесное, и низкой концентрации атомов буферного газа, когда спектр формируется в основном оптическими переходами при парных столкновениях атомов с максвелловским распределением по скоростям. В случае высокой концентрации атомов буферного газа расчеты выполнены в рамках квазистатического подхода [7]. В случае низкой концентрации, когда связанные и квазисвязанные состояния отсутствуют и радиационные переходы происходят только при парных столкновениях, для расчета профиля использовался подход [11], который позволяет учесть усложнения, связанные с существованием центробежного барьера при классическом движении атомов в немонотонном эффективном потенциале. Достоинство используемых подходов в том, что они позволяют оценить форму контура без привлечения данных по элементарным процессам трехчастичной атомной рекомбинации и релаксации.

В расчетах использованы восстановленный из экспериментальных данных по температурной зависимости коэффициента поглощения [13] потенциал взаимодействия в возбужденном состоянии A^3O^+ и потенциалы

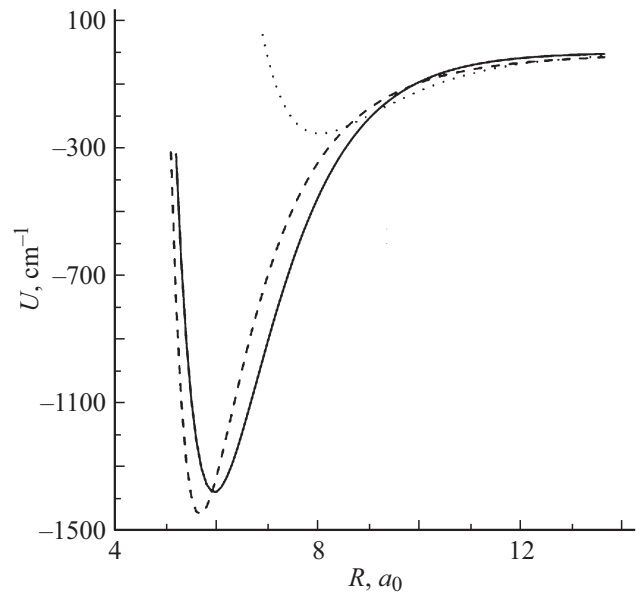


Рис. 1. Потенциальные кривые взаимодействия для возбужденного состояния A^3O^+ , полученные в [13] (штриховая линия) и [14] (сплошная линия), а также потенциальная кривая для основного состояния X^1O^+ [14] (пунктирная линия).

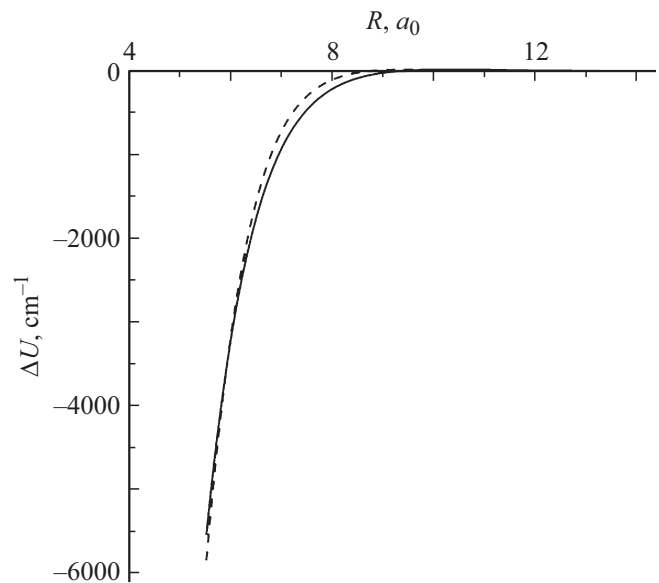


Рис. 2. Разностные потенциалы $\Delta U = U(A^3O^+) - U(X^1O^+)$: штриховая кривая — для основного и возбужденного состояний использованы данные работ [13,14], сплошная кривая — по данным работы [14].

взаимодействия в возбужденном и основном состояниях в форме Морзе [14], которые определены из экспериментов по лазерно-индуцированной флуоресценции (рис. 1). Соответствующие разностные потенциалы ΔU_{if} приведены на рис. 2.

Экспериментальные спектры излучения [3–5], полученные при различных значениях концентраций атомов ксенона N_{Xe} и рассчитанные в приближениях высокой и

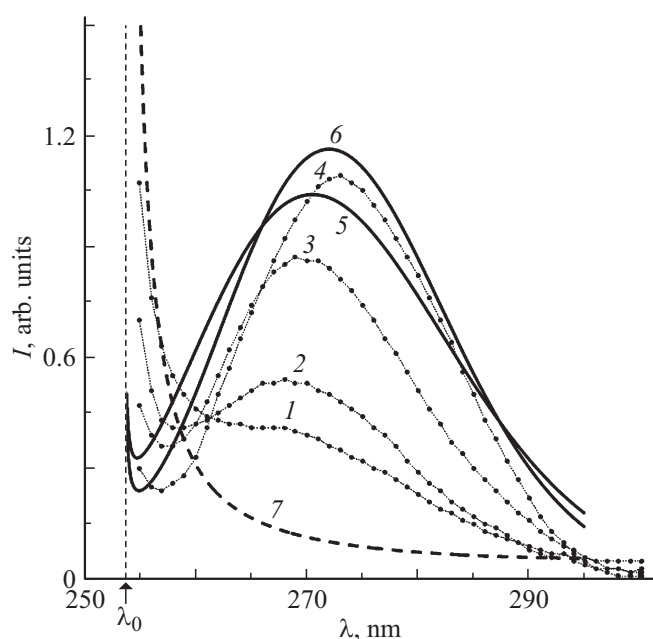


Рис. 3. Экспериментальные (1–4) и расчетные (5–7) спектральные профили излучения в относительных единицах. $N_{\text{Xe}} = 3 \cdot 10^{17}$ (1) [3], $10.1 \cdot 10^{17}$ (2) [3], 10^{19} (3) [4], $1.1 \cdot 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ (4) [5]. 5 — расчет с использованием потенциалов возбужденного и основного состояний A^3O^+ и X^1O^+ из работ [13,14] соответственно, 6 — расчет с использованием потенциалов возбужденного и основного состояний, приведенных в работе [14]. 5, 6 — расчет в приближении высокой концентрации атомов Хе. 7 — расчет в приближении низкой концентрации атомов Хе с использованием потенциалов для состояний A^3O^+ и X^1O^+ из работ [13,14] соответственно. $\lambda_0 = 253.7 \text{ nm}$ — положение резонансной линии $6^3P_1-6^1S_0$.

низкой концентрации атомов ксенона, представлены на рис. 3.

Заключение

Сопоставление результатов расчетов профиля крыла спектральной линии, который формируется при переходе $\text{HgXe}(A^3O^+) \rightarrow \text{HgXe}(X^1O^+)$ в предельных случаях высокого и низкого давлений атомов Хе, с экспериментальными данными при различных давлениях позволяет заключить, что в основе расхождений экспериментальных данных лежит конкуренция скоростей оптических переходов при столкновениях атомов в квазимолекулярном состоянии A^3O^+ и рекомбинации атомов $\text{Hg}(^3P_1)$ и $\text{Xe}(^1S_0)$ в эксимер $\text{HgXe}(A^3O^+)$ с последующей релаксацией возбужденных колебательных состояний и излучением из нижерасположенных связанных состояний. При плотностях атомов буферного газа менее $3 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ крыло спектральной линии $\text{Hg}(^3P_1 \rightarrow ^1S_0)$ в диапазоне $\lambda \sim 255-280 \text{ nm}$ формируется в ходе парных столкновений атомов $\text{Hg}(^3P_1)$ и атомов Хе. При плотностях $N_{\text{Xe}} > 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ крыло спектральной линии

формируется переходами из почти равновесно заселенных колебательно-вращательных состояний.

Хотя первоначально интерес к спектроскопии эксимеров определялся лазерной тематикой, в последние годы спектроскопия эксимеров востребована и в работах по созданию источников сплошного излучения. При этом особо интересны смеси с ксеноном, так как по сравнению с другими инертными газами для таких гетеро- и гомоядерных эксимеров характерно наличие сравнительно мощной потенциальной ямы и, как следствие, более широкополосный спектральный диапазон излучения. Перспективными оказываются не только эксимеры с атомами металлов, но также эксимеры с атомами галогенов [15], гетероядерные [16] и гомоядерные [17] эксимеры атомов инертных газов.

Список литературы

- [1] *Basting D., Marowsky G.* (Eds.) *Excimer Laser Technology*. Springer, 2005. 434 p.
- [2] *Луцицина Н.В.* *Эксимерные лазеры / Учебное пособие*. М.: МГТУ им. Н.Э. Баумана, 2006. 28 с.
- [3] *Крюков Н.А.* // *Опт. и спектр.* 1989. Т. 66. В. 4. С. 721.
- [4] *Lam L.K., Gallagher A., Drulligher R.* // *J. Chem. Phys.* 1978. V. 68. P. 4411.
- [5] *Никифоров Е.В.* // *Опт. и спектр.* 1976. Т. 41. В. 1. С. 339.
- [6] *Devdariani A.Z., Grigorian G.M., Kryukov N.A., Lednev M.G., Zagrebin A.L.* // *J. Phys.: Conf. Series*. 2017. V. 810. P. 012028.
- [7] *Девдаряни А.З.* // *Опт. и спектр.* 1999. Т. 86. № 6. С. 954; *Devdariani A.Z.* // *Opt. Spectrosc.* 1999. V. 86. N 6. P. 853.
- [8] *Зagrebin A.L., Lednev M.G.* // *Опт. и спектр.* 1999. Т. 87. № 6. С. 893; *Zagrebin A.L., Lednev M.G.* // *Opt. Spectrosc.* 1999. V. 86. N 6. P. 812.
- [9] *Зagrebin A.L., Lednev M.G.* // *Опт. и спектр.* 1995. Т. 78. № 2. С. 183; *Zagrebin A.L., Lednev M.G.* // *Opt. Spectrosc.* 1995. V. 78. N 2. P. 159.
- [10] *Беляев А.К., Девдаряни А.З., Себякин Ю.Н.* // *Опт. и спектр.* 1985. Т. 59. В. 3. С. 505; *Belyaev A.K., Devdariani A.Z., Sebyakin Yu.N.* // *Opt. Spectrosc.* 1985. V. 59. N 3. P. 305.
- [11] *Девдаряни А.З., Загребин А.Л.* // *Опт. и спектр.* 1992. Т. 72. В. 3. С. 571; *Devdariani A.Z., Zagrebin A.L.* // *Opt. Spectrosc.* 1992. V. 72. N 3. P. 309.
- [12] *Зagrebin A.L., Себякин Ю.Н.* // *Опт. и спектр.* 1993. Т. 74. В. 4. С. 667.
- [13] *Grycuk T., Findeisen M.* // *J. Phys. B.* 1983. V. 16. P. 975.
- [14] *Okunishi M., Nakazava H., Yamanouchi K., Tsuchiya S.* // *J. Chem. Phys.* 1990. V. 93. P. 7526.
- [15] *Головицкий А.П.* // *ЖТФ.* 2011. Т. 81. № 3. С. 45.
- [16] *Герасимов Г.Н.* // *УФН.* 2004. Т. 174. В. 2. С. 155.
- [17] *Lisenko A.A., Lomaev M.I., Skakun V.S., Tarasenko V.F.* // *Phys. Scr.* 2007. V. 76. P. 211.