

01

Диссоциативная рекомбинация молекулярных ионов Ne_2^+ с электронами. Заселение атомов конфигурации $2p^54p$ в распадающейся плазме

© С.В. Гордеев, В.А. Иванов, Ю.Э. Скобло

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

e-mail: s.gordeev@spbu.ru, v.a.ivanov@spbu.ru, yuri_skoblo@mail.ru

Поступила в редакцию 14.03.2019 г.

В окончательной редакции 14.03.2019 г.

Принята к публикации 23.04.2019 г.

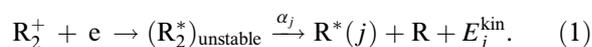
Методом кинетической спектроскопии исследована распадающаяся неоновая плазма. Условия эксперимента: давление неона 0.2–152 Торг, плотность электронов в начальной стадии распада $[e] \leq 5 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-3}$. Плазма создавалась импульсным барьерным разрядом с электродами на внешней поверхности цилиндрической стеклянной трубки. Частота разряда 40–160 Hz. На основании сравнительного анализа зависимостей интенсивностей спектральных линий от времени и температуры электронов в послесвечении показано, что в плане механизмов заселения уровни $2p^54p$ отчетливо разделяются на две группы. Нижние уровни: от $3p_{10}$ до $3p_3$ (обозначения по Пашену) связаны с диссоциативной рекомбинацией молекулярных ионов Ne_2^+ с электронами и вплоть до давлений 0.6 Торг излучаемые ими линии вели себя тождественно линиям переходов $2p^53s \leftarrow 2p^53p$ и $2p^53p \leftarrow 2p^53d$. Кинетика верхних уровней ($3p_5$, $3p_2$, $3p_4$ и $3p_1$) имела более сложный характер, а при малых давлениях населенности всех уровней $2p^54p$ оказались связанными с ударно-радиационной рекомбинацией ионов Ne^+ . Обсуждены существенные различия в зависимостях относительных населенностей $3d$ - и $4p$ -уровней от давления неона.

Ключевые слова: молекулярные ионы, диссоциативная рекомбинация, распадающаяся плазма, элементарные процессы, константа скорости.

DOI: 10.21883/OS.2019.09.48190.106-19

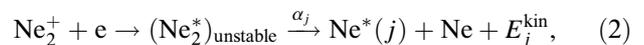
Введение

Молекулярные ионы (МИ) играют важную роль в формировании стационарной и распадающейся слабоионизированной плазмы. Экспериментальному исследованию процессов с участием МИ вслед за [1] посвящено большое количество работ, которые дали обширную информацию о процессах с их участием. В плане анализа оптических свойств плазмы наибольший интерес представляет диссоциативная рекомбинация (ДР) молекулярного иона с электроном:



Процесс идет через захват электрона на термы нестабильной молекулы $(\text{R}_2^*)_{\text{unstable}}$, разлет атомов которой приводит к появлению атомов в возбужденном $\text{R}^*(j)$ и основном R состояниях. Сечение процесса (1) при тепловых энергиях частиц может превышать 10^{-13} cm^2 , как, например, в случае ионов Xe_2^+ [2] (соответствующая константа скорости процесса более $10^{-6} \text{ cm}^3/\text{s}$), поэтому их присутствие даже в относительно малых количествах заметно влияет на скорость деионизации и излучение плазмы. Процесс (1) описывается набором парциальных коэффициентов α_j , задающих распределение потока рекомбинации по выходным каналам процесса и тем самым его вклад в излучение плазмы, и константой

скорости (коэффициентом рекомбинации) $\alpha_{\text{sum}} = \sum_j \alpha_j$, определяющей скорость объемной нейтрализации заряженных частиц. В практике эксперимента имеют место два подхода: измерение α_{sum} по скорости деионизации плазмы и спектроскопия распадающейся плазмы, целью которой является определение величин α_j . Знание последних особенно важно для понимания механизма формирования инверсии населенностей в активных средах рекомбинационных лазеров. Так, ДР Ne_2^+ :



рассматривается как основной механизм селективного заселения верхнего уровня линии 585.2 nm перехода $1s_2 \leftarrow 2p_1$ (в обозначениях Пашена) в лазере на смеси He-Ne-Ar [3]. Процесс (1) проявляется также и в появлении аномально широких спектральных линий в излучении плазмы. Причиной является кинетическая энергия $E_j^{\text{kin}}/2$ рождающихся возбужденных атомов $\text{R}^*(j)$, в десятки раз превышающая тепловую. Причем эффект доплеровского уширения заметен не только в плазме послесвечения, когда ДР является единственным механизмом образования возбужденных атомов [4–6], но и в стационарном разряде на фоне прямого или ступенчатого возбуждения уровней электронами [7].

Спектроскопические наблюдения [2,4–13] послесвечения инертных газов показали, что при комнатной темпе-

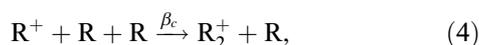
ратуре электронов в результате (1) происходит заселение возбужденных уровней конфигураций $np^5(n+1)p$, $np^5(n+1)d$, $np^5(n+2)p$ (n — главное квантовое число невозбужденного электрона). Авторы экспериментов [14,15] на основе времяпролетной спектроскопии продуктов ДР предложили расширить этот набор, дополнив его уровнями $np^5(n+1)s$ и атомами в основном состоянии.

Населенности возбужденных уровней $[R^*(j)]$ в распадающейся плазме с молекулярными ионами связаны с коэффициентами α_j следующим образом:

$$[R^*(j)] = \alpha_j [R_2^+][e]\tau_j, \quad (3)$$

$[e]$ — плотность электронов, τ_j — радиационное время жизни атома $R^*(j)$.

В (3) предполагается, что ДР является единственным источником появления атомов $R^*(j)$, а их убыль обусловлена исключительно спонтанным излучением. В таких условиях возможно корректное определение величин α_j по результатам оптических наблюдений. Однако спектроскопические эксперименты, как правило, проводятся при высокой плотности нормальных атомов, когда эффективно протекает процесс конверсии:



где $\beta_c \approx 10^{-31} \text{ cm}^6/\text{s}$ (для неона $\beta_c = 0.42 \cdot 10^{-31} \text{ cm}^6/\text{s}$ [8]), и характерное время процесса (4) $\tau_c = 1/(\beta_c [R]^2)$ много меньше времени ДР $\tau_{dr} = 1/(\alpha_{sum}[e])$, так что молекулярные ионы преобладают в ионном составе плазмы. Отсутствие конкурирующих процессов рекомбинации упрощает задачу по исследованию ДР, но при давлениях десятки Торг в кинетике населенностей $[R^*(j)]$ существенную роль начинают играть неупругие атом-атомные столкновения, маскирующие информацию о распределении потоков заселения $\alpha_j [R_2^+][e]$ по уровням j . Попытка оценить роль неупругих процессов была предпринята в работе [13] в отношении ДР ионов Ne_2^+ , для чего анализировались населенности $[Ne^*(j)]$ в распадающейся $Ne-Ne$ -плазме в диапазоне давлений компонент смеси 2–200 Торг. Выполненные измерения показали, в частности, что населенности $4p$ -уровней уже при давлениях единицы Торг подвержены влиянию процессов перемешивания населенностей вследствие атом-атомных столкновений. Решение аналогичной задачи о распределении потока передачи возбуждения от метастабильных атомов $Ne(2^1S_0)$ на уровни $5s$, $4d$ атома неона в $Ne-Ne$ -плазме [16,17] привело к выводу о том, что для исключения неупругих процессов эксперимент должен проводиться при давлении десятки доли Торг. Насколько нам известно, спектроскопическое исследование ДР в таких условиях не проводилось. Постановка такого эксперимента с распадающейся неоновой плазмой является целью данной работы. Для сравнения с имеющимися в литературе данными измерения охватывали широкий диапазон давлений P_{Ne} .

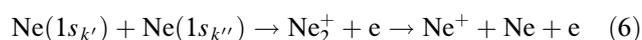
Ионный состав плазмы и послесвечение при низких давлениях

При плотностях атомов $\leq 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ доля Ne_2^+ в ионном составе плазмы составляет менее 10%. Это следует из сравнения скоростей процессов конверсии (4) и ДР (2). Для ионов Ne_2^+ [18]:

$$\alpha_{sum} = 1.7 \cdot 10^{-7} (300 \text{ K}/T_e)^{0.43} \text{ cm}^3/\text{s}, \quad (5)$$

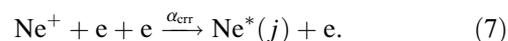
где T_e — температура электронов в кельвинах.

С уменьшением плотности атомов все более заметный вклад в формирование ионного состава вносят процессы с участием атомов конфигурации $2p^53s$ в долгоживущих метастабильных состояниях 3P_2 , 3P_0 и резонансном состоянии 3P_1 ($1s_5$, $1s_3$ и $1s_4$ по Пашену соответственно):



(e — электрон с кинетической энергией $E_{kin} \approx 12-13 \text{ eV}$).

Константы скорости процессов (6) имеют величину порядка $10^{-9} \text{ cm}^3/\text{s}$ [19]. С наибольшей вероятностью процессы (6) приводят к рождению атомных ионов Ne^+ [20]. Их рекомбинация с электронами при тройных столкновениях протекает по схеме

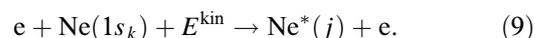


В отличие от ДР первичным продуктом реакции (7) являются атомы с энергией связи возбужденного электрона масштаба $k_B T_e$ [21,22]. Радиационные и столкновительные переходы из этих состояний создают конкурирующий с ДР поток заселения возбужденных уровней. В силу специфики ударно-радиационной рекомбинации (7) константа скорости процесса не зависит от сорта иона и для ее оценки можно воспользоваться удобной аппроксимацией, предложенной в работе [23]:

$$\alpha_{cr} = 1.55 \cdot 10^{-1} T_e^{-0.63} + 6.0 \cdot 10^{-9} T_e^{-2.18} [e]^{0.37} + 3.8 \cdot 10^{-9} T_e^{-4.5} [e], \quad (8)$$

здесь T_e — температура электронов в кельвинах, $[e]$ — плотность электронов в cm^{-3} . В условиях данной работы ($[e] \leq 5 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-3}$) $\alpha_{cr} \leq 10^{-9} \text{ cm}^3/\text{s}$.

Долгоживущие атомы могут непосредственно участвовать в формировании раннего послесвечения. „Быстрые“ электроны, появляющиеся при парных столкновениях (6) и вследствие ударов второго рода $Ne(1s_{k''}) + e \rightarrow Ne + e + E^{kin}$, имеют достаточно энергии для возбуждения из состояний конфигурации $2p^53s$:



Вклад этого процесса, как и (7), можно приближенно оценить на основании литературных данных, однако в условиях неопределенности величин α_j представляется более надежным опираться на результаты эксперимента, позволяющие идентифицировать механизмы заселения исследуемых уровней.

Объект и метод исследования

В настоящей работе основное внимание уделено уровням конфигурации $2p^5 4p$. Такой выбор обусловлен следующими обстоятельствами. Как видно из рис. 1, уровни $4p$ в шкале энергий расположены вблизи наиболее населенного основного колебательного уровня $v = 0$ иона Ne_2^+ [24,25]. В послесвечении разряда в неоне потоки излучения с нижних $4p$ -уровней связаны с ДР Ne_2^+ [8,10]. Это означает, что соответствующие интенсивности линий пропорциональны потокам ДР и, следовательно, коэффициентам α_{4p_i} . В то же время линии с более высоких уровней могут содержать информацию о конкурирующих с ДР процессах. Так, для контроля потока ударно-радиационной рекомбинации регистрировались наиболее яркие линии, излучаемые $4d$ - (576.44 нм) и $5d$ - (503.8 нм) уровнями.

Заселение нижних $4p$ -уровней может также происходить вследствие столкновительных переходов с верхних $3d$ -уровней (показаны на рис. 1), отстоящих от $3p_{10}$ на ≈ 0.01 eV. Для оценки роли этого процесса одновременно с линиями переходов $3s \leftarrow 4p$ в послесвечении регистрировались линии 705.1 и 705.9 нм.

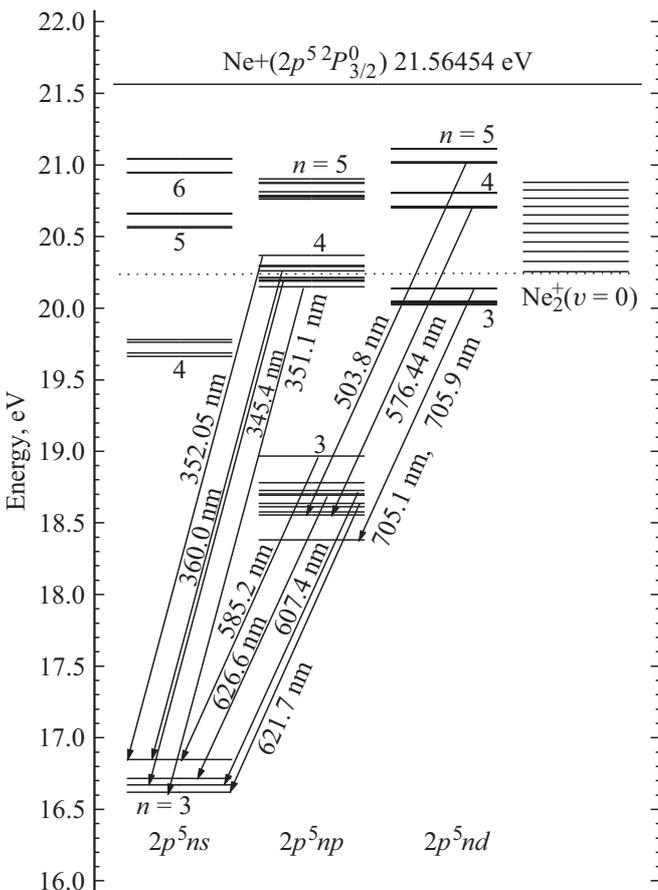


Рис. 1. Схема уровней атома неона и энергии атомного $\text{Ne}^+(2P_{3/2}^0)$ и молекулярного ионов. Положение колебательных уровней молекулярного иона Ne_2^+ указано в соответствии с результатами работы [25].

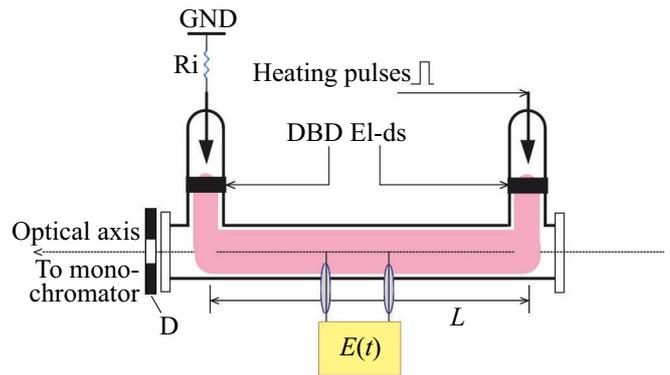


Рис. 2. Схема совмещения барьерного разряда с внешними электродами (DBD EI-ds) и зондирующего импульсного разряда между внутренними электродами. $E(t)$ — модуль измерения напряженности продольного электрического поля, D — диафрагма диаметром 5 мм. Ri — резистор 22 Ohm для контроля тока в течение „нагревающего“ импульса.

Временной ход потока возбуждения из долгоживущих состояний (9) в послесвечении анализировался на основании измерений плотностей атомов с электронной конфигурацией $2p^5 3s$ по методу поглощения.

Основные измерения выполнены в послесвечении импульсного барьерного разряда с частотой 40–160 Hz в цилиндрической трубке с внешними электродами [26] (рис. 2) при давлении неона 0.2–152 Torr и плотности электронов в начале послесвечения $[e](t_0) \leq 5 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-3}$. Использование такого разряда для исследования процессов в послесвечении оказалось удобным по следующим причинам. Во-первых, он позволял создавать плазму с плотностью электронов 10^9 – 10^{11} cm^{-3} практически без разогрева газа. При всех условиях разряд имел диффузный характер, явление контракции не наблюдалось. Во-вторых, в отличие от импульсного разряда между внутренними электродами, в таком разряде отсутствует неизбежное, особенно при низких давлениях, выделение примесей из электродов и связанное с ним загрязнение газа. Наконец, при достаточно низкой частоте повторения разряда (т.е. длительной стадии распада плазмы) его послесвечение развивается при $[\text{Ne}^+](t_0) = [e](t_0)$, так как в фазе разряда (несколько микросекунд) молекулярные ионы не успевают образоваться. Однозначность начальных условий важна для построения адекватной численной модели послесвечения.

Рассматриваемые процессы образования возбужденных атомов существенно по-разному реагируют на изменение температуры электронов T_e . Скорость ДР слабо зависит от T_e (5). Напротив, поток рекомбинации ионов Ne^+ (7) при плотности электронов $\geq 10^{10} \text{ cm}^{-3}$ следует зависимости $T_e^{-4.5}$ (8). Возбуждение быстрыми электронами (9) вообще не связано со средней тепловой энергией электронов. Эти различия использованы в работе для поиска условий преимущественно диссоциативного заселения исследуемых уровней.

Применялась методика [27,28] „подогрева“ электронов в стадии послесвечения слабым электрическим полем импульсного разряда между внутренними электродами разрядной трубки. Длительность и амплитуда импульса $I(t)$ выбирались достаточно малыми, чтобы плотность электронов не менялась за время импульса. Результаты такого эксперимента были использованы также для оценок плотности электронов $[e]$ в послесвечении по проводимости плазмы. Напряженность продольного электрического поля $E(t)$ измерялась методом двух зондов.

Оптическая часть схемы эксперимента содержала монохроматор с линейной дисперсией 1 nm/mm, на входную щель которого проектировалось изображение разрядной трубки. Интенсивности спектральных линий регистрировались методом многоканального счета фотонов. При измерениях поглощения в качестве источника излучения использовалась разрядная трубка диаметром 1.5 см, наполненная неоном при давлении 2 Торг и расположенная поперек оси основного разряда. Населенности уровней конфигурации $2p^53s$ определялись по измеренным значениям относительного поглощения A на линиях 621.7, 607.4, 626.6, 585.2 nm и рассчитанным зависимостям величины A от оптической плотности в центре линии $K(\nu_{LU})L$, где $K(\nu_{LU})$ — коэффициент поглощения в центре линии, ν_{LU} — частота перехода, L — толщина поглощающего слоя. В расчетах учитывалось наличие двух спектральных компонент, соответствующих изотопам ^{20}Ne и ^{22}Ne с относительными концентрациями 0.905/0.095. Контуров линий излучения и поглощения считались фойгтовскими. Параметры радиационных переходов, использованные при расчетах зависимостей относительного поглощения от оптической плотности, приведены в табл. 1.

Населенности уровней $[Ne(1s_k)]$ определялись по известной формуле, связывающей концентрацию поглощающих атомов с коэффициентом поглощения в центре линии:

$$[Ne(1s_k)] = N_L = K(\nu_{LU}) \frac{g_L}{g_U} \frac{8\pi}{\lambda_{LU}^3} \frac{1}{A_{LU}} \sqrt{\frac{2\pi k_B T_a}{M_a}},$$

где N_L — концентрация поглощающих атомов, g_L и g_U — кратности вырождения (статистические веса) нижнего и верхнего уровней перехода; λ_{LU} — длина волны перехода; k_B — постоянная Больцмана, M_a — масса атома, T_a — температура поглощающих атомов. В нашем эксперименте T_a практически совпадала с комнатной температурой в силу чрезвычайно малой длительности импульсов разряда по сравнению с периодом их повторения. В заключение заметим, что поглощение излучения на линии 585.2 nm ($1s_2 \leftarrow 2p_1$) практически отсутствовало. Относительное поглощение было существенно меньше 0.01 даже в начальной фазе послесвечения, когда наблюдалось максимальное поглощение на остальных трех линиях. Это означало, что концентрация атомов неона на уровне $1s_2$ (верхнем из

четырех уровней конфигурации $2p^53s$) не превышала $3.5 \cdot 10^8 \text{ cm}^{-3}$, т. е. была по крайней мере на два порядка меньше концентраций атомов на каждом из трех уровней: $1s_3, 1s_4, 1s_5$.

Результаты и обсуждение

Регистрируемые спектральные линии и соответствующие им переходы представлены в табл. 2. В качестве линий сравнения для анализа послесвечения линий переходов $2p^53s \leftarrow 2p^54p$ ($1s_k \leftarrow 3p_i$) выбраны линия 585.2 nm, в которой переносится порядка 10% потока ДР ионов Ne_2^+ [13], и линии 576.44 и 503.8 nm, верхние уровни которых расположены значительно выше основного колебательного уровня иона Ne_2^+ .

При всех условиях эксперимента интенсивности линий $J_{705.1}(t)$ и $J_{705.9}(t)$ вели себя тождественно $J_{585.2}(t)$. В то же время $J_{576.44}(t)$ и $J_{503.8}(t)$, будучи близкими, имели иной временной ход. Что касается линий, излучаемых при переходах с $3p_i$ -уровней, то они отчетливо разделились на две группы: интенсивности линий с верхних четырех уровней ($3p_1, 3p_4, 3p_2$ и $3p_5$) походили на $J_{576.44}(t)$ или имели более сложный, но всегда отличающийся от $J_{585.2}(t)$ характер, тогда как остальные вплоть до давления неона 0.6 Торг не отличались от $J_{585.2}(t)$.

Температурные и временные зависимости интенсивностей рассматриваемых спектральных линий оказались существенно различными при высоких и низких давлениях неона.

Высокие давления

При давлениях P_{Ne} десятки Торг и выше скорость конверсии (4) достаточно велика для формирования в стационарном разряде такого ионного состава, в котором $[Ne_2^+] \approx [e]$. Для послесвечения такого разряда характерна линейная зависимость от времени обратного корня интенсивности, неоднократно наблюдавшаяся в эксперименте (например, [38]):

$$\sqrt{\frac{J_\lambda(t_0)}{J_\lambda(t)}} = 1 + \alpha_{sum}[e](t_0)(t - t_0), \quad (10)$$

соответствующая решению уравнения:

$$\frac{d[e]}{dt} = -\alpha_{sum}[e][Ne_2^+]$$

в пренебрежении амбиполярной диффузией и при $[Ne_2^+](t_0) = [e](t_0)$. В ряде случаев для контроля корректности эксперимента мы обращались к послесвечению стационарного разряда (рис. 3) и при давлениях ≥ 20 Торг получали зависимости $J_\lambda(t)$, соответствующие (10) (рис. 4). Из наклона прямой на рис. 4, используя в качестве коэффициента рекомбинации значение (5), нетрудно для плотности электронов получить оценку $[e](t_0) \approx 5 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-3}$. Раннее послесвечение барьерного разряда, как видно из рис. 3, отличается от

Таблица 1. Параметры радиационных переходов, использованные при расчетах зависимости относительного поглощения от оптической плотности поглощающего слоя в центре линии

Переход	Длина волны λ_{LU} , nm	Вероятность радиационного перехода A_{LU} , 10^7 s^{-1}	Время жизни атома на верхнем уровне τ_U , ns	Константа скорости тушения верхнего уровня при столкновениях с атомами неона, $10^{-11} \text{ cm}^3/\text{s}$	Изотопический сдвиг частот перехода $\nu_{LU}(^{22}\text{Ne}) - \nu_{LU}(^{20}\text{Ne})$, MHz
$1s_5 \leftarrow 2p_6$	621.7	0.637 ^a	20.1 ^a	1.2 ± 0.4^b	1674 ± 3^a
$1s_4 \leftarrow 2p_3$	607.4	6.03 ^a	16.5 ^a	21.9 ± 1.1^b	1695 ± 17^e
$1s_3 \leftarrow 2p_5$	626.6	2.49 ^a	19.7 ^a	3.2 ± 0.8^b	1658 ± 3^a
$1s_2 \leftarrow 2p_1$	585.2	6.82 ^a	14.47 ^a	1.6 ^г	2287 ± 3^ж

Примечание. ^a [29]; ^b [30]; ^в [31]; ^г [32]; ^д [33]; ^е [34]; ^ж [35].

Таблица 2. Характеристики спектральных линий, использованных в эксперименте

Длина волны, nm	Переход	Энергия верхнего уровня, eV [24]	Вероятности переходов, 10^6 s^{-1}	Радиационные времена жизни, ns	Относительные потоки рекомбинации	Кратности вырождения верхних уровней, g_U
585.2	$1s_2 \leftarrow 2p_1$	18.966	68.2 ^a	14.47 ^a	2.7	1
705.1	$2p_{10} \leftarrow 3s'_1$	20.139	2.38 ^b	11.3 ^b	0.85	3
705.9	$2p_{10} \leftarrow 3s''_1$	20.1375	7.41 ^b	15.5 ^b	0.85	5
345.42	$1s_4 \leftarrow 3p_3$	20.2592	3.68 ^b	89.9 ^b	1.1	1
344.77	$1s_5 \leftarrow 3p_6$	20.21418	2.13 ^b	118 ^b	2.2	5
350.12	$1s_4 \leftarrow 3p_7$	20.21099	1.2 ^b	89.2 ^b	1.5	3
351.52	$1s_4 \leftarrow 3p_8$	20.19692	0.671 ^b	125 ^b	1.6	5
347.26	$1s_5 \leftarrow 3p_9$	20.18843	1.69 ^b	121 ^b	2.2	7
351.07	$1s_5 \leftarrow 3p_{10}$	20.14965	0.251 ^b	169 ^b	1	3
576.44	$2p_9 \leftarrow 4d'_4$	20.70536	11.2 ^b	53.9 ^b		9
503.78	$2p_9 \leftarrow 5d'_4$	21.01552	4.44 ^b	107 ^b		9

Примечание. ^a [29]; ^b [36]; ^в [37].

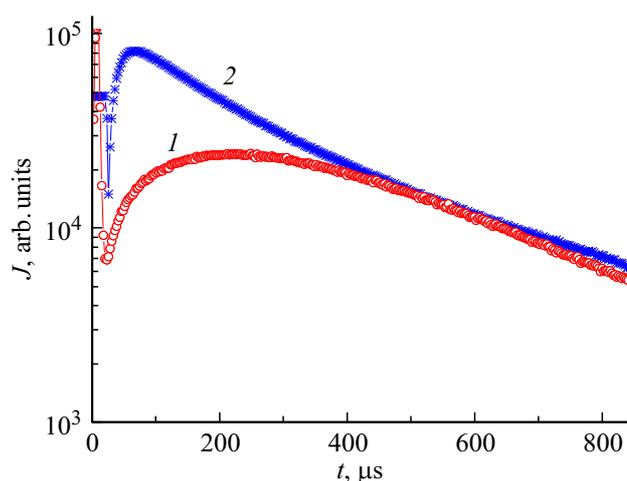


Рис. 3. Раннее послесвечение барьерного разряда (1) и разряда постоянного тока (2) 15 mA при давлении 24 Torr и сопоставимых плотностях электронов в начале послесвечения для линии 585.2 nm.

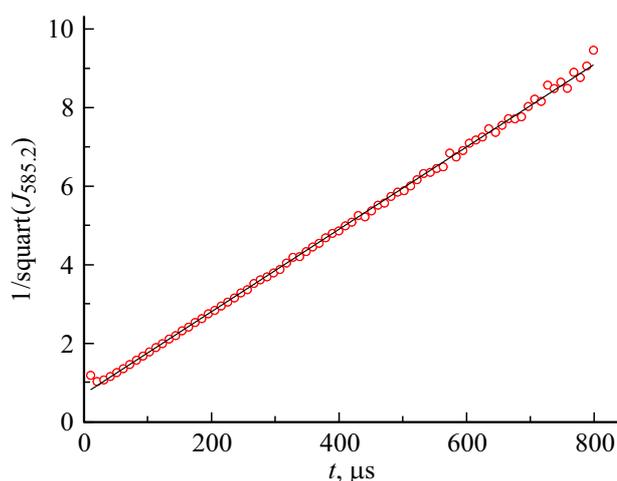


Рис. 4. Интенсивность линии 585.2 nm в послесвечении разряда постоянного тока 40 mA. $P_{\text{Ne}} = 75 \text{ Torr}$, $[e](t_0) \approx 5 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-3}$, $t_0 \approx 20 \mu\text{s}$. Сплошная линия — линейная аппроксимация (построена в программе Origin).

послесвечения стационарного разряда постоянного тока. Одна из причин — упомянутое выше отличие начальных условий.

При высоких давлениях для интенсивностей $J_{576.44}(t)$ и $J_{503.8}(t)$ характерно отсутствие релаксационного максимума в раннем послесвечении (рис. 5), что исключает

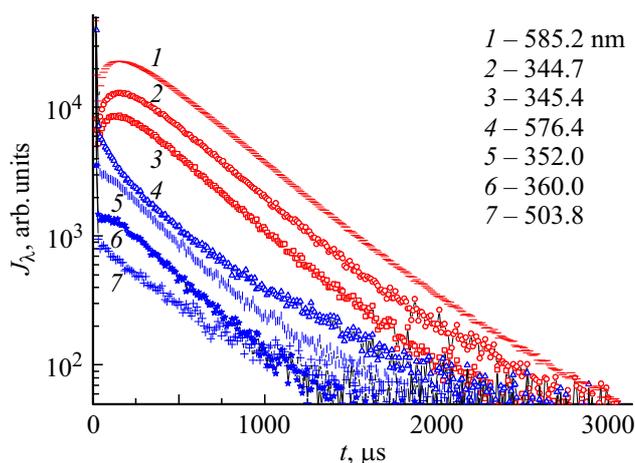


Рис. 5. Интенсивности спектральных линий в послесвечении при давлении 21 Торр.

участие ударно-радиационной рекомбинации в потоке заселения соответствующих уровней. Это заключение подтверждается и характером температурных зависимостей $J_{576.44}(T_e)$ и $J_{503.8}(T_e)$ (см. ниже). В условиях малой относительной плотности ионов Ne^+ заселение $4d$ - и $5d$ -уровней может быть связано с другими процессами. Во-первых, с возбуждением быстрыми электронами из состояний конфигурации $2p^53s$ (9). Этот поток как функция времени на качественном уровне может быть прослежен на основании результатов измерений плотностей атомов $[Ne(1s_k)]$ (некоторые показаны на рис. 6). Мы сопоставили поток (9) с зависимостями $J_{576.44}(t)$ и $J_{503.8}(t)$ на основе модели [39], дополненной процессами с участием атомов с электронной конфигурацией $2p^53s$, и пришли к заключению, что таким образом можно объяснить спад $J_{576.44}(t)$ (рис. 5) в раннем послесвечении.

Во-вторых, можно рассмотреть рекомбинацию молекулярных ионов как колебательно-возбужденных, так и в основном состоянии. Кинетика населенностей колебательных уровней молекулярных ионов в плазме инертных газов до сих пор в экспериментальном плане остается практически не исследованной. Теоретические расчеты [40] предсказывают возможность рекомбинации колебательно-возбужденных ионов с константами скорости масштаба $(2-10) \cdot 10^{-7} \text{ cm}^3/\text{s}$. Учитывая, что в процессе конверсии атомных ионов (4), появляющихся в послесвечении в парных столкновениях (6), образуются колебательно-возбужденные молекулярные ионы, можно предположить наличие потока ДР на высоковозбужденные уровни атома неона, в том числе и на $4d$ и $5d$.

Что касается молекулярных ионов в основном колебательном состоянии $R_2^+(v=0)$, то их участие в заселении высоковозбужденных уровней в послесвечении наблюдалось неоднократно в различных инертных газах [41] и имело простое объяснение. Процесс (1) идет с участием электронов, энергия которых достаточна для перехода системы на термы нестабильной молекулы $(R_2^*)_{\text{unstable}} \rightarrow R^*(j) + R$. Данный процесс является поро-

говым, если уровень энергии молекулярного иона лежит ниже уровня энергии атома $R^*(j)$ в конечном состоянии. Пороговый процесс ДР становится более заметным при повышенных температурах электронов [2].

Типичная для высоких давлений реакция интенсивностей линий на импульсный „подогрев“ электронов показана на рис. 7. Обработка большого массива подобных данных подтвердила тот факт, что поток излучения в переходах $2p^53s \leftarrow 2p^53p$ и $2p^53p \leftarrow 2p^53d$ отражает температурную зависимость коэффициента рекомбинации α_{sum} (5). Что касается линий переходов $2p^53s \leftarrow 2p^54p$, то их реакция на изменение T_e дополняет картину временных зависимостей на рис. 5 в плане различия механизмов возбуждения групп верхних и нижних $4p$ -уровней. Особенно показателен переход от уровня $3p_3$ (линия 345.4 нм) к соседнему уровню $3p_5$, лежащему выше на 0.032 eV (линия 360.0 нм). Подобные $J_{360.0}(T_e)$ растущие зависимости интенсивностей линий с уровня $3p_5$ и более высоких, в том числе $4d$ и $5d$, мы связываем с пороговым процессом ДР. Альтернативный механизм — возбуждение рассматриваемых уровней тепловыми электронами — также проявляется в эксперименте с подогревом электронов, но, во-первых, при более высоких температурах электронов, и, во-вторых, ему отвечают значительно более сильные зависимости

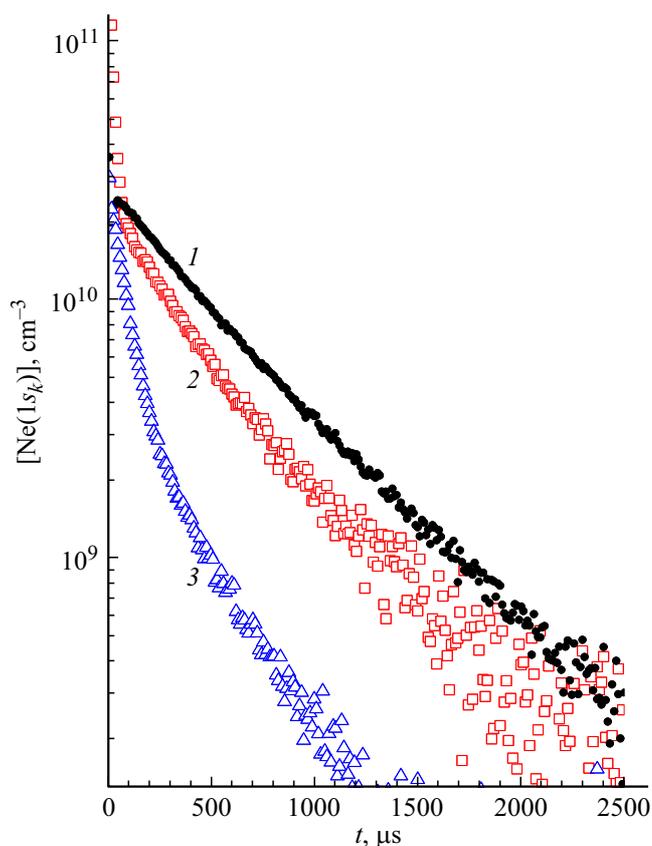


Рис. 6. Плотности атомов с электронной конфигурацией $2p^53s$ в послесвечении при давлении 21 Торр, условия соответствуют данным рис. 5: 1 — $[Ne(1s_5)]$, 2 — $[Ne(1s_4)]$, 3 — $[Ne(1s_3)]$.

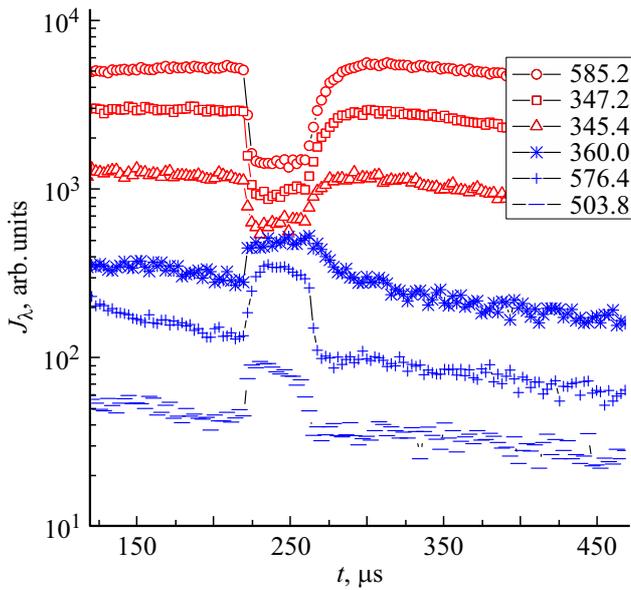


Рис. 7. Отклик интенсивностей линий на импульсный нагрев электронов в послесвечении. Температура электронов в импульсе соответствует $k_B T_e \approx 0.35$ eV.

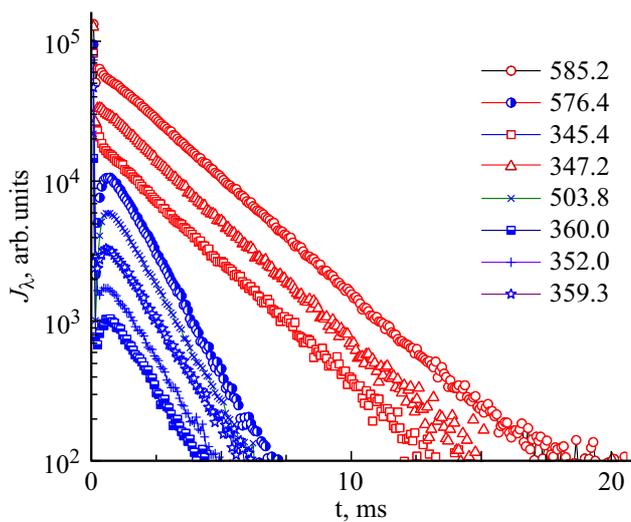


Рис. 8. Интенсивности линий (в abs. units.) в послесвечении. Давление неона 1.4 Torr.

интенсивностей линий от T_e [41], чем наблюдавшиеся в настоящей работе.

Низкие давления

С уменьшением давления падает скорость конверсии (4) и ионный состав в послесвечении таков, что $[Ne_2^+] \ll [Ne^+]$. В этих условиях зависимости интенсивностей $J_\lambda(t)$ линий, излучаемых при переходах с уровней конфигурации $2p^5 4p$, как видно из рис. 8, еще более отчетливо разделились на две группы. Температурные зависимости интенсивностей также наглядно

подтверждали различие механизмов заселения, только при $[Ne_2^+] \ll [Ne^+]$ потоки заселения уровней, расположенных выше $3p_3$, оказались связанными с механизмом ударно-радиационной рекомбинации (7). На это указывают значительно более выраженный по сравнению с 585.2 nm отклик интенсивностей всех линий второй группы на нагрев электронов, похожий на показанный на рис. 9 для линии 576.44 nm.

Отмеченные выше особенности поведения двух групп линий сохранялись вплоть до давления 0.6 Torr. При дальнейшем понижении давления наблюдался переход во вторую группу всех линий переходов $2p^5 3s \leftarrow 2p^5 4p$. Это указывает пределы по давлению неона, в которых в данном эксперименте заселение шести нижних $4p$ -уровней атома неона оказалось связанным с ДР молекулярных ионов: 152–0.6 Torr. В этом диапазоне мы и приводим основные результаты работы. Заметим, что в плане механизмов заселения уровней $4p$ эти результаты не противоречат выводам работы [42], в которой замечено участие ДР (2) и в заселении уровня $3p_2$, но в существенно иных условиях, а именно в распадающейся плазме смеси He–Ne при давлении неона менее 10^{-3} Torr. Так же, как и при высоких давлениях в настоящей работе, это могло быть проявлением порогового механизма ДР.

На рис. 10 показаны результаты расчета относительных населенностей $4p$ -уровней при различных давлениях неона по измеренным интенсивностям линий. Видно, что эти величины слабо меняются при увеличении плотности атомов более чем на два порядка величины. При этом вычисленные по населенностям относительные потоки рекомбинации (также показаны на рис. 10) отчетливо коррелируют со статистическими весами уровней. Очевидно, что при отсутствии столкно-

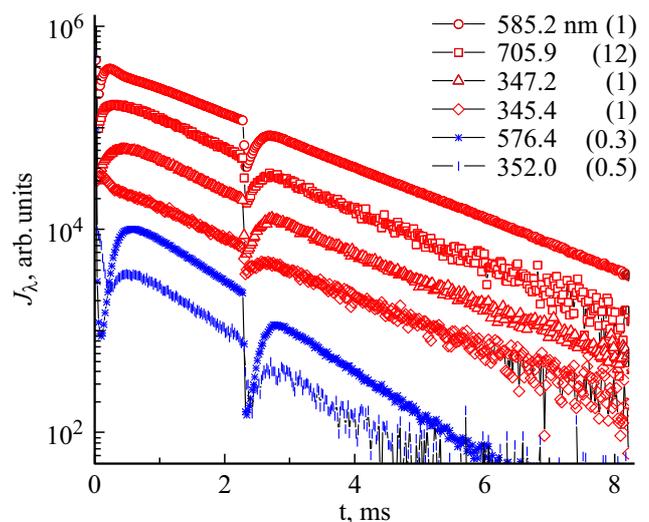


Рис. 9. Интенсивности линий (с учетом спектральной чувствительности) в послесвечении с импульсным нагревом электронов при давлении неона 0.6 Torr. Для удобства расположения на графике интенсивности умножены на коэффициенты, показанные в скобках.

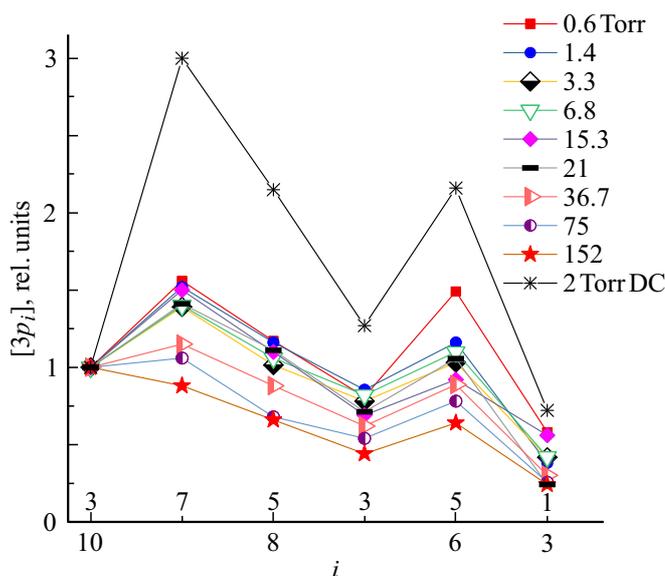


Рис. 10. Относительные населенности $3p_i$ -уровней при различных давлениях. По оси абсцисс — номер i уровней $3p_i$ (по Пашену) в порядке возрастания их энергии. Населенность $3p_{10}$ принята за единицу. Статистические веса соответствующих уровней показаны над осью абсцисс.

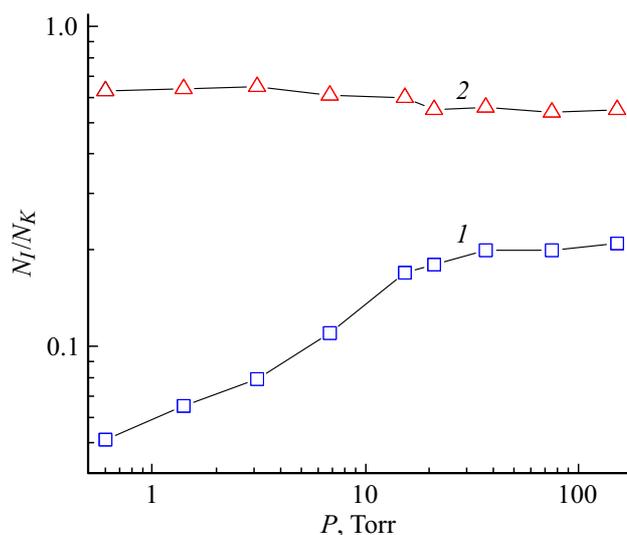


Рис. 11. Относительные населенности верхних $3d$ -уровней: 1 — $[Ne(3s'_1)]/[Ne(3p_9)]$, 2 — $[Ne(3s'_1)]/[Ne(3s''_1)]$.

вительного „перемешивания“ $4p$ -уровней это отражает особенности механизма ДР молекулярных ионов Ne_2^+ . Заметим, что пропорциональность населенностей статистическим весам просматривается и при ступенчатом возбуждении уровней электронами. В этом убеждают данные рис. 10, полученные в условиях стационарного разряда в неоне при давлении 2 Торг.

Аналогичные рассуждения справедливы и для двух рассмотренных в работе уровней $3d$. Как видно из представленных на рис. 11 данных, отношение населенностей $[Ne(3s'_1)]/[Ne(3s''_1)]$ не зависит от давления неона и

близко к отношению статистических весов $3/5$, которое в данном случае почти совпадает с отношением населенностей при равновесном распределении, поскольку отличие уровней энергии не превышает 0.002 eV.

Существенно иная картина возникает при сравнении населенностей $3d$ - и $4p$ -уровней. Данные рис. 11 показывают 4-кратный рост отношения $J_{705.9}/J_{347.2}$ с приближением к давлению ≈ 20 Torr¹, что заставляет вернуться к вопросу о механизмах формирования населенностей возбужденных уровней. Похожие результаты наблюдений относительных населенностей $3p$ - и $4p$ -уровней в работе [13] было предложено объяснить большей эффективностью столкновительных переходов $4p \rightarrow 3p$ по сравнению с „перемешиванием“ внутри конфигурации $4p$. Для обоснования этой точки зрения необходимы детальные данные о ходе потенциалов взаимодействия $Ne^*(j) + Ne$, которыми мы не располагаем. Заметим, что определенную роль в рассматриваемых явлениях может играть и деформация распределения населенностей по колебательным уровням молекулярных ионов с изменением плотности атомов. Однако современное состояние этого вопроса пока не позволяет привлечь механизмы колебательной релаксации к объяснению обсуждаемых результатов. Можно лишь сослаться на простое соображение, что уменьшение степени колебательного возбуждения молекулярного иона с ростом давления приведет к падению потока рекомбинации прежде всего на более высокие уровни $4p$, чем на $3d$. Это и наблюдается в эксперименте (рис. 11).

Возвращаясь к основному вопросу настоящей работы, мы предлагаем результаты обработки измерений при давлении неона 0.6 Torr, представленные на рис. 10, как неискаженные столкновительным „перемешиванием“ данные о населенностях шести нижних уровней конфигурации $2p^5 4p$ в распадающейся плазме и о распределении потока ДР по этим уровням. Относительные потоки рекомбинации вычислены как отношения населенностей уровней к их радиационным временам жизни. Таблица 2 дополняет рис. 10 данными об относительных населенностях верхних уровней конфигураций $2p^5 3p$ (по линии 585.2 nm) и $2p^5 3d$ (по линиям 705.1 nm и 705.9 nm).

Выводы

Методом кинетической спектроскопии проведено исследование послесвечения неоновой плазмы, создававшейся барьерным разрядом, на линиях переходов $2p^5 3s \leftarrow 2p^5 3p$, $2p^5 3s \leftarrow 2p^5 4p$ и $2p^5 3p \leftarrow 2p^5 3d$ при давлениях неона 0.2 – 152 Torr и плотностях электронов $[e] \leq 5 \cdot 10^{10}$ cm⁻³. На основе сравнения зависимостей интенсивностей спектральных линий от времени в послесвечении и их отклика на импульсный „подогрев“

¹ Выбор $3p_9$ в данном случае обусловлен значительно более высокой точностью регистрации интенсивности линии 347.2 nm по сравнению с 351.1 nm вследствие существенного отличия их яркостей в послесвечении.

электронов найдены условия, в которых заселение нижних шести уровней конфигурации $2p^5 4p$ связано с ДР молекулярных ионов Ne_2^+ с электронами. Распределение населенностей этих уровней при давлении неона 0.6 Торр мы представляем как неискаженное столкновительным „перемешиванием“ и поэтому отражающее реальное распределение потока ДР по $4p$ -уровням атома неона. Эти данные указывают на отчетливую пропорциональность потоков ДР кратностям вырождения конечных состояний. Заселение верхних $4p$ -уровней, как и более высоких уровней $4d$ и $5d$, при давлениях неона десятки Торр происходит с заметным участием порогового процесса ДР. При минимальных в настоящем эксперименте давлениях 0.33–0.2 Торр доминирующая роль в заселении всех уровней конфигурации $2p^5 4p$ принадлежит ударно-радиационной рекомбинации ионов Ne^+ .

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] *Biondi M.A., Brown S.C.* // Phys. Rev. 1949. V. 75. N 11. P. 1700. doi 10.1103/PhysRev.75.1700
- [2] *Shiu Y.-J., Biondi M.A., Sipler D.P.* // Phys. Rev. A. 1977. V. 15. N 2. P. 494. doi 10.1103/PhysRevA.15.494
- [3] *Shon J.W., Rhoades R.L., Verdeyen J.T., Kushner M.J.* // J. Appl. Phys. 1993. V. 73. N 12. P. 8059. doi 10.1063/1.353921
- [4] *Connor T.R., Biondi M.A.* // Phys. Rev. 1965. V. 140. N 3A. P. A778. doi 10.1103/PhysRev.140.A778
- [5] *Frommhold L., Biondi M.A.* Phys. Rev. 1969. V. 185. N 1. P. 244. doi 10.1103/PhysRev.185.244
- [6] *Иванов В.А.* // Опт. и спектр. 1979. Т. 46. В. 1. С. 27.
- [7] *Ciurylo R., Bielski A., Domyślowska J., Szudy J., Trawinski R.S.* // J. Phys. B. 1994. V. 27. N 18. P. 4181.
- [8] *Sauter G.F., Gerber R.A., Oskam H.J.* // Physica. 1966. V. 32. N 11–12. P. 1921. doi 10.1016/0031-8914(66)90158-3
- [9] *Steenhuijsen L.W.G., Van Schaik N., Van de Nieuwenhuizen L.C.A.M., Verspaget F.H.P.* // J. de Phys. Colloq. 1979. V. 40. N C7. P. 95. doi 10.1051/jphyscol:1979747
- [10] *Иванов В.А., Сухомлинов В.С.* // ЖТФ. 1982. Т. 52. В. 7. С. 1313.
- [11] *Иванов В.А., Сухомлинов В.С.* // Опт. и спектр. 1983. Т. 54. В. 2. С. 219.
- [12] *Malinovsky L., Lukac P., Trnovec J., Hong C.J., Talsky A.* // Czech. J. Phys. 1990. V. 40. N 2. P. 191.
- [13] *Иванов В.А.* // Опт. и спектр. 1991. Т. 70. В. 5. С. 967.
- [14] *Ramos G.B., Schlamkowitz M., Sheldon J., Hardy K.A., Peterson J.R.* // Phys. Rev. A. 1995. V. 51. N 4. P. 2945. doi 10.1103/PhysRevA.51.2945
- [15] *Ramos G., Sheldon J.W., Hardy K.A., Peterson J.R.* // Phys. Rev. A 1997. V. 56. N 3. P. 1913. doi 10.1103/PhysRevA.56.1913
- [16] *Ионих Ю.З., Пенкин Н.П.* // Опт. и спектр. 1971. Т. 31. В. 5. С. 837.
- [17] *Ионих Ю.З., Пенкин Н.П., Куранов А.Л.* // Опт. и спектр. 1973. Т. 34. В. 4. С. 814.
- [18] *Frommhold L., Biondi M.A., Mehr F.J.* // Phys. Rev. 1968. V. 165. N 1. P. 44. doi 10.1103/PhysRev.165.44
- [19] *Демидов В.И., Колоколов Н.Б.* // ЖТФ. 1978. Т. 48. В. 9. С. 1832.
- [20] *Колоколов Н.Б., Благоев А.Б.* // УФН. 1993. Т. 163. № 3. С. 55. doi 10.3367/UFNr.0163.199303c.0055; *Kolokolov N.B., Blagoev A.B.* // Phys. Usp. 1993. V. 36. N 3. P. 152. doi 10.1070/PU1993v036n03ABEH002138
- [21] *Bates D.R., Kingston A.E., McWhirter R.W.P.* // Proc. Roy. Soc. Ser. A. 1962. V. 267. N 1330. P. 297. doi 10.1098/rspa.1962.0101
- [22] *Гуревич А.В., Пятаевский Л.П.* // ЖЭТФ. 1964. Т. 46. В. 4. С. 1281. *Gurevich A.V., Pitaevskii L.P.* // JETP. 1964. V. 19. N 4. P. 870.
- [23] *Stevelfelt J., Boulmer J., Delpech J-F.* // Phys. Rev. A. 1975. V. 12. N 4. P. 1246. doi 10.1103/PhysRevA.12.1246
- [24] *Saloman E.B., Sansonetti C.J.* // J. Phys. Chem. Ref. Data. 2004. V. 33. N 4. P. 1113. doi 10.1063/1.1797771
- [25] *Carrington A., Gammie D.I., Page J.C., Shaw A.M., Hutson J.M.* // J. Chem. Phys. 2002. V. 116. N 9. P. 3662. doi 10.1063/1.1436111
- [26] *Иванов В.А.* // Опт. и спектр. 2019. Т. 126. В. 3. С. 247. doi 10.21883/OS.2019.03.47361.185-18
- [27] *Иванов В.А., Макасюк И.В.* // Изв. вузов. Сер. Физ. 1988. Т. 31. № 10. С. 43.
- [28] *Иванов В.А., Скобло Ю.Э.* // ЖЭТФ. 1994. Т. 106. В. 6. С. 1704. *Ivanov V.A., Skoblo Yu.E.* // JETP. 1994. V. 79. N 6. P. 921.
- [29] *Inatsugu S., Holmes J.R.* // Phys. Rev. A. 1975. V. 11. N 1. P. 26. doi 10.1103/PhysRevA.11.26
- [30] *Chang R.S.F., Setser D.W.* // J. Chem. Phys. 1980. V. 72. N 7. P. 4099. doi 10.1063/1.439638
- [31] *Van Schaik N., Steenhuijsen L.W.G., Van Bommel P.J.M., Verspaget F.H.P.* // J. de Phys. Colloq. 1979. V. 40. N C7. P. 97. doi 10.1051/jphyscol:1979748
- [32] *Monteil A., Chevalere J., Bouvier A., Janin J.* // JQSRT. 1977. V. 18. N 6. P. 573.
- [33] *Konz E., Kraft T., Rubahn H.-G.* // Appl. Opt. 1992. V. 31. N 24. P. 4995. doi 10.1364/AO.31.00499
- [34] *Basar Gö., Basar Gü., Büttgenbach S., Kröger S., Kronfeldt H.-D.* // Z. Phys. D. 1997. V. 39. N 4. P. 283.
- [35] *Одищов В.И.* // Опт. и спектр. 1965. Т. 18. № 3. С. 357.
- [36] *Seaton M.J.* // J. Phys. B. 1998. V. 31. N 24. P. 5315. doi org/10.1088/0953-4075/31/24/013
- [37] *Груздев П.Ф., Логинов А.В.* // Опт. и спектр. 1973. Т. 35. В. 1. С. 3.
- [38] *Biondi M.A.* // Phys. Rev. 1963. V. 129. N 3. P. 1181. doi 10.1103/PhysRev.129.1181
- [39] *Иванов В.А., Петровская А.С., Скобло Ю.Э.* // Хим. физ. 2016. Т. 35. № 1. С. 87. doi 10.7868/S0207401X16010040; *Ivanov V.A., Petrovskaya A.S., Skoblo Y.E.* // Russ. J. Phys. Chem. B. 2016. T. 10. N 1. C. 153.
- [40] *Ngassam V., Orel A.E.* // Phys. Rev. A. 2006. V. 73. N 3. P. 032720. doi 10.1103/PhysRevA.73.032720
- [41] *Иванов В.А.* // УФН. 1992. Т. 162. № 1. С. 35. doi 10.3367/UFNr.0162.199201b.0035; *Ivanov V.A.* // Sov. Phys. Usp. 1992. V. 35. N 1. P. 17. doi 10.1070/PU1992v035n01ABEH002192
- [42] *Иванов В.А., Петровская А.С., Скобло Ю.Э.* // ЖЭТФ. 2019. Т. 155. В. 5. С. 901. doi 10.1134/S0044451019050146