01

Гелиевое послесвечение без метастабильных частиц

© В.А. Иванов, Ю.Э. Скобло

Санкт-Петербургский государственный университет, 198504 Санкт-Петербург, Россия e-mail: v.a.ivanov@spbu.ru, yuri skoblo@mail.ru

Поступила в редакцию 08.05.2019 г. В окончательной редакции 25.07.2019 г. Принята к публикации 12.08.2019 г.

Исследовано послесвечение импульсного барьерного разряда в гелии с малой примесью неона $(10^{-2}\%)$, создающего плазму с малой плотностью метастабильных частиц. Ранняя стадия послесвечения такого разряда свободна от процессов с участием метастабильных частиц и имеет чисто рекомбинационную природу. Характеристики послесвечения интерпретируются на основании модели с учетом колебательной кинетики и диссоциативной рекомбинации молекулярных ионов He₂⁺. Сопоставление экспериментальных данных и модельных решений для потоков ударно-радиационной рекомбинации ионов He⁺ с электронами и диссоциативной рекомбинации приводит к выводу в пользу последнего процесса как источника образования возбужденных атомов.

Ключевые слова: послесвечение разряда в гелии, метастабильные атомы, диссоциативная рекомбинация.

DOI: 10.21883/OS.2019.12.48681.156-19

Введение

Процессы электрон-ионной рекомбинации играют важную роль в физике плазмы и астрофизике, в формировании свойств газоразрядной плазмы и особенно активных сред плазменных лазеров. Основным каналом деионизации плазмы, содержащей молекулярные ионы, является их диссоциативная рекомбинация с электронами. Исследованию этого процесса, начиная с 1949 г. [1], посвящено множество работ. Так, число цитированных исследований в обзоре [2] приближается к четыремстам. Механизм диссоциативной рекомбинации является необходимым звеном моделей звездных и планетарных атмосфер [3], развитию теоретических подходов к его описанию уделяется большое внимание [4].

Процессы в газоразрядной гелиевой плазме, определяющие скорость ее деионизации, принципиально отличаются от процессов в плазме других инертных газов. Вопервых, в гелиевой плазме концентрации атомов в метастабильных состояниях Не $(2^{3}S_{1}, 2^{1}S_{0})$ (в дальнейшем Не_{*m*}), как правило, на порядок величины превышают плотность электронов [e] [5]. Как стало известно уже из первых экспериментов [6], в стадии распада плазмы столкновения этих атомов:

$$\operatorname{He}_m + \operatorname{He}_m \to \operatorname{He}^+ + \operatorname{He} + e \to \operatorname{He}_2^+ + e,$$
 (1)

создают мощный поток ионизации, маскирующий рекомбинационные процессы. К тому же энергия образующихся в реакции (1) "быстрых" электронов достаточно велика для ступенчатой ионизации и возбуждения атомов гелия. Во-вторых, вследствие специфики потенциалов взаимодействия возбужденных атомов гелия He^{*} с атомами в основном состоянии отсутствует благоприятное для диссоциативной рекомбинации (DR)

$$\operatorname{He}_{2}^{+}(v) + e \xrightarrow{\operatorname{d}_{\operatorname{DR}(j)}} \operatorname{He}^{*}(j) + \operatorname{He}$$
 (2)

($\alpha_{\rm DR}$ — коэффициент рекомбинации) пересечение термов He* + He и He2 вблизи наиболее населенного основного колебательного уровня v = 0 молекулярного иона [7]. Наконец, в гелиевой плазме образуются метастабильные молекулы $He_2^*(2s^3\Sigma_{\mu}^+)$, которые также участвуют в процессах типа (1). Все это сильно затрудняет исследование механизма DR (2), детально изученного в других системах, и понимание его роли в распадающейся слабоионизованной гелиевой плазме. Как неоднократно отмечалось в литературе [8,9], обилие исследований в данном случае не способствовало прояснению ситуации. Коэффициенты DR при температуре электронов $T_e = 300 \,\mathrm{K}$ по данным различных авторов отличаются в десятки раз: от $\alpha_{\mathrm{DR}} \approx 10^{-8}\,\mathrm{cm}^3/\mathrm{s}$ в ранних работах [1,10,11] до $\leq 5 \cdot 10^{-10}$ cm³/s в [5]. В экспериментах [12], выполненных с помощью техники Test Storage Ring, получено $lpha_{
m DR}pprox 3\cdot 10^{-10}\,{
m cm^3/s}$ для ${
m He_2^+}(v=0)$ и $lpha_{
m DR} \geq 2 \cdot 10^{-7} \, {
m cm}^3$ /s для ионов ${
m He}_2^+(v \geq 3)$. Похожие результаты предлагает и теоретический анализ [9], различающий эффективность рекомбинации ионов в различных колебательных состояниях: величины масштаба $5 \cdot 10^{-11} \,\mathrm{cm^3/s}$ для ионов $\mathrm{He_2^+}(v=0)$ и значительно более высокие скорости DR в случае колебательновозбужденных ионов $\text{He}_2^+(v > 3, 4)$, характерные для молекулярных ионов других инертных газов.

Не менее противоречивы и результаты спектроскопического анализа гелиевого послесвечения. До настоящего времени не сформировалась единая точка зрения даже по вопросу о механизмах образования возбужденных атомов в распадающейся гелиевой плазме. Выводы первых исследований, связывавших послесвечение с DR [13,14], впоследствии были пересмотрены [15] в пользу гипотезы о доминирующей роли ударнорадиационной рекомбинации ионов He⁺.

В настоящей работе представлены результаты спектроскопического исследования гелиевого послесвечения, свободного от процессов с участием метастабильных частиц. Показано, что адекватное описание послесвечения достигается в рамках модели диссоциативной рекомбинации как источника возбужденных атомов.

Эксперимент

В качестве объекта исследования использовалась распадающаяся гелиевая плазма с небольшой (~ 10⁻²%) добавкой неона, инициированная диэлектрическим барьерным разрядом (DBD) в цилиндрической стеклянной трубке с электродами (полоски медной фольги) на ее внешних боковых поверхностях (рис. 1) при давлениях десятки Torr [16] и частотах десятки-сотни Hz. В [16] показано, что по сравнению как с импульсным разрядом между электродами внутри трубки, так и внешними электродами на вертикальных отростках трубки (при этом электроды DBD снимались), как показано на рис. 1, DBD такой конфигурации создает на оси плазму с плотностью метастабильных атомов $[He(2^{1}S_{0})]$ почти в 3 раза, $[\text{He}(2^{3}S_{1})]$ — в 4 раза меньшей при той же плотности электронов. При этом плотность метастабильных молекул гелия также оказывается пониженной. Это радикально меняло картину раннего послесвечения в атомном и молекулярном спектрах. В настоящей работе представлены некоторые результаты анализа и моделирования послесвечения такого разряда.

Плотность электронов в начальной стадии послесвечения оценивали по скорости спада $[\text{He}(2^1S_0)](t)$, обусловленного процессом:

$$\operatorname{He}(2^{1}S_{0}) + e \xrightarrow{k_{e}} \operatorname{He}(2^{3}S_{1}) + e, \qquad (3)$$

который является в данных условиях основным каналом их разрушения. Константа k_e скорости процесса (3) известна [17] $k_e = 3.5 \cdot 10^{-7}$ cm³/s и не зависит от температуры электронов [18], которая может меняться в ранней стадии послесвечения. Интенсивности линий Не и Ne на выходе монохроматора с разрешением 0.05 nm регистрировались 2048-канальным счетчиком фотонов с необходимым временным разрешением. Помимо интенсивностей спектральных линий и молекулярных полос He^{*}₂, в работе измерялось поглощение на линиях 501.57 nm (2¹S \leftarrow 3¹P) и 388.9 nm (2³S \leftarrow 3³P) и вычислялись абсолютные величины плотностей [He(2¹S₀)] и [He(2³S₁)].

Результаты и обсуждение

На рис. 2 показан временной ход наиболее ярких линий гелия $587.6 \text{ nm} (2^3 P \leftarrow 3^3 D)$ и неона 585.2 nm

Разряд	[He(2^1S_0], 10^{11} cm ⁻³	[He $(2^{3}S_{1}]$, 10 ¹¹ cm ⁻³
DBD	0.45	1.3
El	1.2	5.2

 $(1s_2 \leftarrow 2p_1$ по Пашену) в послесвечении обоих разрядов при давлении гелия 19 Тогг. Параметры разрядов подобраны так, чтобы плотность электронов в начале послесвечения в обоих случаях была одинаковой [e] $\approx 8 \cdot 10^{10}$ cm⁻³. Видно, что раннее гелиевое послесвечение с уменьшенной плотностью метастабильных частиц (таблица) имеет принципиально иной характер. Подчеркнем, что это не является следствием каких-либо постразрядных явлений, например, изменения плотности газа вследствие его нагрева, а обусловлено элементарными процессами в плазме, на что указывают сравнительно небольшие отличия в послесвечении неоновых линий.

Для интерпретации наблюдаемых различий мы обратились к модели распадающейся Не–Ne-плазмы [19], представив в ней He_2^+ как молекулярный ион, имеющий три состояния: $\text{He}_2^+(v=0)$, $\text{He}_2^+(v=1)$ и $\text{He}_2^+(v=2)$, населенности которых описываются соответствующими дифференциальными уравнениями.

Вследствие процессов типа (1) и механизма конверсии:

$$\operatorname{He}^{+} + \operatorname{He} + \operatorname{He} \xrightarrow{k_{c}} \operatorname{He}_{2}^{+}(v = 2) + \operatorname{He}$$
(4)

(константа скорости процесса $k_c = (6.2 \pm 0.5) \cdot 10^{-32} \text{ cm}^3/\text{s}$ [5]) молекулярные ионы образуются в высоковозбужденных колебательных состояниях [5], поэтому соответствующий поток мы направили на верхний в модели колебательный уровень v = 2, в то время как в рекомбинации с электронами участвуют ионы $\text{He}_2^+(v=1)$, формируя атомный спектр, и $\text{He}_2^+(v=0)$ как источник молекулярного спектра. Таким образом, в модели поток DR равен:

$$F_{\rm DR} = \alpha_{\rm DR} \left[{\rm He}_2^+(v=1) \right] [e], \qquad (5)$$

где в качестве коэффициента рекомбинации колебательно-возбужденных ионов мы взяли в соответствии с [12] (см. выше) $\alpha_{\rm DR} = 2 \cdot 10^{-7} \, {\rm cm}^3$ /s. Поток (5) сравниваем с потоком ударно-радиационной рекомбинации (CRR) ионов He⁺:

$$F_{\rm CRR} = \alpha_{\rm CRR} \left[{\rm He}^+ \right] \left[e \right], \tag{6}$$

в расчетах которого использована предложенная в [20] аппроксимация:

$$\alpha_{\rm CRR} = 1.55 \cdot 10^{-10} T_e^{-0.63} + 6.0 \cdot 10^{-9} T_e^{-2.18} \,[{\rm e}]^{0.37} + 3.8 \cdot 10^{-9} T_e^{-4.5} \,[{\rm e}], \tag{7}$$



Рис. 1. *а* — Разрядная трубка (диаметр 3.9 cm, *L* = 22 cm). D — диафрагма диаметром 5 mm, W — кварцевые окна, El₁ и El₂ — электроды на вертикальных отростках; *b* — расположение электродов DBD.

Для [e] = $0.8 \cdot 10^{11}$ сm⁻³ и температуры электронов $T_e = 300$ К $\alpha_{CRR} \approx 2.5 \cdot 10^{-9}$ сm³/s, причем основной вклад в (7) дает третье слагаемое, что указывает на сильную зависимость потока ударно-радиационной рекомбинации от T_e . С целью учета этого фактора мы внесли второе дополнение к модели [19], состоявшее в учете релаксации температуры электронов в послесвечении на основе данных, представленных в [5].

Специфика DR в гелии требует анализа процессов, формирующих распределение населенностей по колебательным уровням молекулярного иона. Данные о таких процессах, подтвержденные экспериментальными наблюдениями кинетики колебательно-возбужденных ионов $\operatorname{He}_2^+(v)$ в плазме, отсутствуют. В литературе, однако, доминирует точка зрения, согласно которой скорости колебательной релаксации при столкновениях с частицами плазмы на порядки выше скоростей иных процессов с участием молекулярных ионов. Так, авторы [15] ссылаются на неопубликованную оценку времени жизни молекулярного иона $\text{He}_2^+(v)$, обусловленного столкновением с атомами гелия: $\tau_v \approx (10 \, \mu {
m s}) / v$ при $P_{\rm He} = 1$ Torr, что для v = 1 соответствует константе скорости $k_{\rm rel} \approx 3 \cdot 10^{-12} \,{\rm cm}^3$ /s. Bates [21] предложил еще более высокие скорости релаксации ионов $\operatorname{He}_2^+(v)$ в гелии, отвечающие константе $k_{\rm rel} \ge 10^{-10} \,{\rm cm}^3/{\rm s}$. Такие скорости исключают наличие в плазме колебательновозбужденных ионов. К аналогичному выводу приводят и оценки [22] скорости релаксации при взаимодействии молекулярных ионов с электронами. В то же время в упомянутых выше экспериментах [12] авторы обнаружили значительное отклонение распределения молекулярных ионов гелия от равновесного, причем ионы в состояниях $\text{He}_{2}^{+}(v = 3, 4)$ вносили существенный вклад в поток рекомбинации. Заметим, что этой степени возбуждения иона достаточно для появления вследствие DR возбужденных атомов $He(3^3D)$.

Представленные на рис. 2 модельные расчеты потоков DR (5) выполнены с константами $k_{\rm rel}(1 \rightarrow 0) =$



Рис. 2. Интенсивности спектральных линий (в числах фотоэлектронов ФЭУ) гелия и неона в послесвечении двух разрядов и модельные решения (в относительных единицах) для потоков CRR (умножены на 0.25), DR и плотности электронов при $[e](t = 0) = 0.8 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-3}$.

 $= 10^{-12}$ cm³/s и $k_{\rm rel}(2 \rightarrow 1) = 3 \cdot 10^{-12}$ cm³/s; потоки CRR, вычисленные по (6), (7), умножены на 0.25. В качестве начальных условий для плотностей молекулярных ионов ставились нулевые значения. Важно подчеркнуть, что переход в модели от одного послесвечения к другому осуществлялся изменением только двух параметров — плотностей метастабильных атомов. Видно, что на качественном уровне в рамках модели DR удается достичь значительно более адекватного описания эксперимента. Данные, приведенные на рис. 2, говорят о том, что интенсивности линий гелия 587.6 nm и неона 585.2 nm ведут себя по-разному в ранней фазе послесвечения DBD: интенсивность 587.6 nm убывает со временем, а интенсивность 585.2 nm растет. Ход интен-

сивности линии 587.6 nm в раннем послесвечении DBD практически совпадает со спадом плотности $[\text{He}^+](t)$ вследствие конверсии (4), что говорит о малой роли процессов с участием метастабильных атомов. То, что интенсивность $J_{587.6}(t) \sim [\text{He}^+(t)]$ на этой стадии распада плазмы достаточно очевидно: при выбранных константах k_{rel} характерное время $\tau_{\text{rel}} = 1/(k_{\text{rel}}[\text{He}])$ релаксации населенностей $[\text{He}^+(v)]$ много меньше времен всех других процессов с участием частиц плазмы, поэтому справедливо квазистационарное решение:

$$[\text{He}_{2}^{+}(v=1)] \approx \frac{k_{c} [\text{He}^{+}] [\text{He}]^{2}}{k_{rel} [\text{He}]} = [\text{He}^{+}] \frac{\tau_{rel}}{\tau_{c}}, \qquad (8)$$

 $(\tau_c = 1/k_c [\text{He}]^2$ — время конверсии (4)) притом, что плотность электронов, меняется незначительно. Со временем, как видно из рис. 2, послесвечение DBD приходит к обычно наблюдаемому состоянию, когда в балансе заряженных частиц проявляются и начинают доминировать процессы ионизации типа (1) с участием метастабильных частиц.

Из рис. 2 следует, что поток F_{DR} , вычисленный с указанными выше константами k_{rel} , примерно на порядок превышает F_{CRR} . Как ясно из (5), (6), (8),

$$\frac{F_{\rm DR}}{F_{\rm CRR}} = \frac{\alpha_{\rm DR}}{\alpha_{\rm CRR}} \, \frac{\tau_{\rm rel}}{\tau_c}$$

что позволяет найти их отношение и при других параметрах α_{DR} и τ_{rel} в рамках квазистационарного подхода. Подчеркнем, что увеличение значений k_{rel} в модели не меняло характера изменения потоков $F_{\text{DR}}(t)$ и $F_{\text{CRR}}(t)$ со временем, оставляя зависимость $F_{\text{DR}}(t)$ более близкой к $J_{587.6}(t)$ в послесвечении.

Наблюдающийся на рис. 2 рост интенсивности $J_{585.2}(t)$ линии неона 585.2 nm в начальной фазе послесвечения соответствует увеличению потока DR с электронами ионов HeNe⁺ и Ne₂⁺. Это увеличение потока объясняется возрастанием плотностей [HeNe⁺](t) вследствие последовательности процессов конверсии ионов He₂⁺ в HeNe⁺ и Ne₂⁺ [23]. Дальнейшее изменение интенсивности $J_{585.2}(t)$ обусловлено зависимостями от времени [e](t), [HeNe⁺](t) и [Ne₂⁺](t).

В заключение отметим, что модели гелиевого послесвечения при давлениях десятки Тогт в рамках DR соответствуют и результаты анализа зависимости интенсивностей линий от температуры электронов $J_{\lambda}(T_e)$. Так, наши неоднократные наблюдения отклика $J_{\lambda}(t)$ на импульсный "подогрев" электронов в послесвечении [24–26] всегда приводили к заключению о типичной для DR слабой зависимости $J_{587.6}(T_e) \sim T_e^{-0.5}$, причем в [23] это получено в эксперименте с одновременным наблюдением неоновых линий, свечение которых было связано с CRR ионов Ne⁺ и следовало температурной зависимости $J_{\lambda}(T_e) \sim T_e^{-2}$.

Выводы

Изучено послесвечение барьерного разряда в гелии с малой добавкой неона, создававшего плазму с малой относительной плотностью метастабильных частиц атомов He($2^{1}S_{0}$), He($2^{3}S_{1}$) и молекул He $_{2}^{*}(2s^{3}\Sigma_{u}^{+})$. Спектроскопические характеристики такой плазмы в течение длительного времени свободны от влияния процессов с участием метастабильных частиц, что позволило, повидимому, впервые в практике эксперимента наблюдать гелиевое послесвечение в условиях чисто рекомбинационной кинетики. Анализ интенсивности J_{587,6}(t) наиболее яркой линии атома гелия 587.6 nm (переход $He(3^{3}D) \rightarrow He(2^{3}P)$) проведен в рамках двух моделей: ударно-радиационной рекомбинации ионов He⁺ и диссоциативной рекомбинации колебательно-возбужденных ионов He₂⁺. Сравнение модельных и экспериментальных зависимостей J_{587.6}(t) убеждает в диссоциативном характере заселения состояния $He(3^{3}D)$. Таким образом, результаты работы указывают на возможность постановки эксперимента по исследованию механизма диссоциативной рекомбинации молекулярных ионов гелия в наиболее благоприятных для этой задачи условиях.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- Biondi M.A., Brown S.C. // Phys. Rev. 1949. V. 75. N 11. P. 1700. doi 10.1103/PhysRev.75.1700
- [2] Florescu-Mitchell A.I., Mitchell J.B.A. // Phys. Rep. 2006.
 V. 430. P. 277.
- [3] Mihajlov A.A., Srećković V.A., Ignjatović Lj.M., Dimitrijević M.S. // MNRAS. 2016. V. 458. P. 2215.
- [4] Cŭrtk R., Hvizdoš D., Greene C.H. // Phys. Rev. A. 2018.
 V. 98. P. 062706. doi 10.1103/PhysRevA.98.062706
- [5] Deloche R., Monchicourt P., Cheret M., Lambert F. // Phys. Rev. A. 1976. V. 13. N 3. P. 1140. doi 10.1103/PhysRevA.13.1140
- [6] Phelps A.V., Brown S.C. // Phys. Rev. 1952. V. 86. N 1. P. 102. doi 10.1103/PhysRev.86.102
- [7] Mulliken R.S. // Phys. Rev. 1964. V. 136. N 4A. P. A962. doi 10.1103/PhysRev.136.A962
- [8] Bates D.R. // Comments Atom. Mol. Physics. 1976. V. 5. P. 89.
- [9] Carata L., Orel A.E., Suzor-Weiner A. // Phys. Rev. A. 1999.
 V. 59. N 4. P. 2804. doi 10.1103/PhysRevA.59.2804
- [10] Johnson R.A., McClure B.T., Holt R.B. // Phys. Rev. 1950.
 V. 80. N 3. P. 376. doi 10.1103/PhysRev.80.376
- [11] Chen C.L., Leiby C.C., Goldstein L. // Phys. Rev. 1961. V. 121.
 N 5. P. 1391. doi 10.1103/PhysRev.121.1391
- [12] Pedersen H.B., Buhr H., Altevogt S., Andrianarijaona V., Kreckel H., Lammich L., de Ruette N., Staicu-Casagrande E.M., Schwalm D., Strasser D., Urbain X., Zajfman D., Wolf A. // Phys. Rev. A. 2005. V. 72. N 1. P. 012712. doi10.1103/PhysRevA.72.012712
- Biondi M.A., Holstein T. // Phys. Rev. 1951. V. 82. N 6. P. 962. doi 10.1103/PhysRev.82.962

- [14] Rogers W.A., Biondi M.A. // Phys. Rev. 1964. V. 134. N 5A.
 P. A1215. doi 10.1103/PhysRev.134.A1215
- [15] Ferguson E.E., Fehsenfeld F.C., Schmeltekopf A.L. // Phys. Rev. 1965. V. 138. N 2A. P. A381. doi 10.1103/PhysRev.138.A381
- [16] Иванов В.А. // Опт. и спектр. 2019. Т. 126. В. 3. С. 247. doi 10.21883/OS.2019.03.47361.185-18
- [17] Phelps A.V. // Phys. Rev. 1955. V. 99. N 4. P. 1307. doi 10.1103/PhysRev.99.1307
- [18] Иванов В.А., Приходько А.С., Скобло Ю.Э. // Опт. и спектр. 1991. Т. 70. № 3. С. 507.
- [19] Иванов В.А., Петровская А.С., Скобло Ю.Э. // Химическая физика. 2016. Т. 35. № 1. С. 87. doi 10.7868/S0207401X16010040; *Ivanov V.A., Petrov-skaya A.S., Skoblo Y.E.* // Russ. J. Phys. Chem. B. 2016. V. 10. N 1. C. 153.
- [20] Stevefelt J., Boulmer J., Delpech J.-F. // Phys. Rev. A. 1975.
 V. 12. N 4. P. 1246. doi 10.1103/PhysRevA.12.1246
- [21] Bates D.R. // J. Phys. B. 1979. V. 12. N 1. P. L35.
- [22] Stevefelt J. // Phys. Rev. A. 1973. V. 8. N 5. P. 2507. doi 10.1103/PhysRevA.8.2507
- [23] Veatch G.E., Oskam H.J. // Phys. Rev. A. 1970. V. 2. N 4.
 P. 1422. doi 10.1103/PhysRevA.2.1422
- [24] Иванов В.А., Скобло Ю.Э. // Изв. вузов. Сер. Физика. 1984.
 Т. 2. Р. 67; Ivanov V.A., Skoblo Y.E. // Sov. Physics J. 1984.
 V. 27. N 2. C. 144–148.
- [25] Иванов В.А., Скобло Ю.Э. // ЖЭТФ. 1994. Т. 106. В. 6.
 С. 1704; Ivanov V.A., Skoblo Yu.E. // J. Exp. Theor. Phys. 1994. V. 79. N 6. P. 921.
- [26] Иванов В.А., Петровская А.С., Скобло Ю.Э. // ЖЭТФ.
 2019. Т. 155. В. 5. С. 901. doi 10.1134/S0044451019050146;
 Ivanov V.A., Petrovskaya A.S., Skoblo Y.E. // JETP. 2019.
 V. 128. N 5.