

# ОСОБЕННОСТИ ОБРАЗОВАНИЯ ГАЛОИДОСОДЕРЖАЩИХ ЭКСИМЕРНЫХ МОЛЕКУЛ В ЯДЕРНО-ВОЗБУЖДАЕМОЙ ПЛОТНОЙ ПЛАЗМЕ

## DISTINCTIONS OF THE CREATION RARE GAS HALOGEN EXCIMERS IN NUCLEAR-INDUCED PLASMA

Ю. А. Дюжов, А. И. Миськевич  
Yu. A. Dyuzhov, A. I. Mis'kevich

Акционерное общество «Государственный научный центр Российской Федерации – Физико-энергетический институт им. А. И. Лейпунского»  
Joint Stock Company «State Scientific Centre of The Russian Federation – Institute for Physics and Power Engineering Named After A. I. Leypunsky»

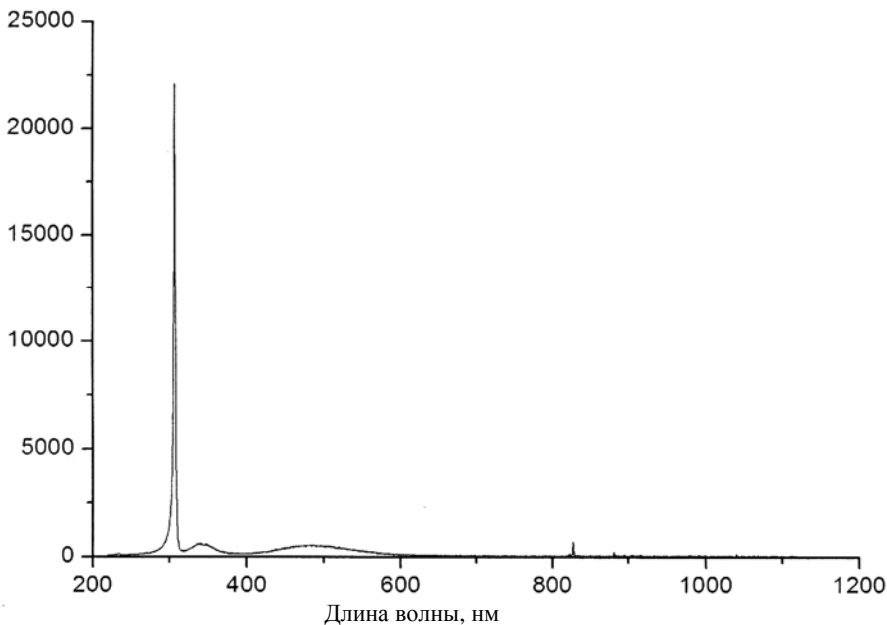
*Рассматриваются спектральные характеристики люминесценции плотных газовых смесей инертных газов с низким содержанием доноров  $CCl_4$ ,  $SF_6$ ,  $C_3F_7I$  ( $P_{\text{донор}} \sim 0,1 \div 1,0$  Торр). Экспериментальные исследования были выполнены для смесей с содержанием тяжелого инертного газа от 15 Торр до 1900 Торр при общем давлении (в случае добавки третьего газа Ar) не более 1900 Торр при возбуждении заряженными частицами высокой энергии (E-пучок, осколки деления  $^{235}U$ ). Проведенные измерения показали, что основным каналом образования двухатомных и трехатомных эксимерных молекул является реакция ион-ионной рекомбинации положительных ионов  $Xe^+$  ( $Kr^+$ ) и  $Xe_2^+$  ( $Kr_2^+$ ) с отрицательными ионами донора атомов галогена. Для получения максимального световыхода (B-X), (C-A), ( $4^2G-1^2G$ ) полос эксимерных молекул оптимальная концентрация донора атомов галогена в смеси должна быть сравнима с начальной концентрацией электронов в треке ядерной частицы.*

*Spectral characteristics of the luminescence of dense rare gas mixtures with low content of the  $CCl_4$ ,  $SF_6$ ,  $C_3F_7I$  ( $P \sim 0,1 \div 1,0$  Torr) donors have been measured. The studies were performed with mixtures containing from 15 to 1900 Torr heavy rare gases, excited by high energy electron beam and fission fragments of  $^{235}U$ . A model of plasma – chemical processes for dense rare gas mixtures with a very low content of the galogen donors is proposed. In such mixtures excimer molecules are mainly produced by ion-ion recombination of rare positive and halogen negative ions. Optimal concentration of the galogen donor molecules must be compare with electron concentration in tracks of nuclear particles.*

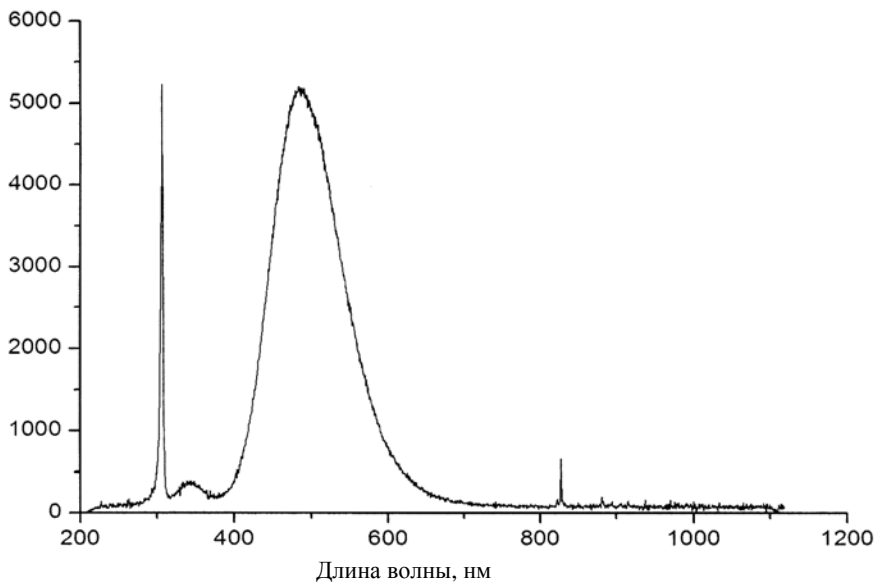
### 1. Введение

Двухатомные и трехатомные эксимерные молекулы на основе атомов тяжелых инертных газов (Xe, Kr) и галогенов Cl, F, I являются эффективными преобразователями энергии накачки смесей этих газов в световое и лазерное излучение ультрафиолетового ( $\Delta\lambda = 248-354$  нм) и видимого ( $\Delta\lambda \sim 400 \div 600$  нм) диапазонов длин волн [1–6]. Обычно накачка таких смесей производится сильноточным пучком электронов высокой энергии ( $E_e \sim 0,1-1,0$  МэВ), обеспечивающим мощность удельного энерговыклада в газ вплоть до нескольких МВт/см<sup>3</sup> [2]. В настоящее время имеющаяся в литературе экспериментальная информация по излучательным характеристикам газовых сред, в которых образуются эксимерные молекулы, получена для газовых смесей с высоким содержанием галогеносодержащей примеси – обычно более 1 Торр.

Для получения максимального световыхода двухатомных и трехатомных эксимерных молекул в газовых смесях высокого давления, накачиваемых заряженными частицами высокой энергии, такие концентрации электроотрицательного донора могут оказаться избыточными. В виде примера на рис. 1 приведены спектры люминесценции (Xe +  $CCl_4$ ) газовых смесей, возбуждаемых электронным пучком с энергией 150 кэВ, с повышенным (рис. 1а) и низким (рис. 1б) содержанием донора  $CCl_4$ . Эти экспериментальные результаты показывают, что световыход в полосе ( $4^2G-1^2G$ ) трехатомной эксимерной молекулы  $Xe_2Cl^*$  при парциальном давлении донора  $CCl_4$  в (Xe +  $CCl_4$ ) смеси, равном 0,03 Торр, почти в 10 раз превышает световыход смеси, содержащей 0,43 Торр  $CCl_4$ .

$I$  отн. ед.

а



б

Рис.1. Спектры спонтанного излучения (Xe-CCl<sub>4</sub>) смесей при возбуждении пучком быстрых электронов с энергией 150 кэВ. Давление Xe – 500 Торр, CCl<sub>4</sub> – 0,43 Торр (а) и 0,03 Торр (б)

В настоящей работе рассматриваются действующие механизмы образования двухатомных XeCl\*, KrF\*, XeI\* и трехатомных Xe<sub>2</sub>Cl\*, Kr<sub>2</sub>F\*, Xe<sub>2</sub>I\* эксимерных молекул в плотных газовых смесях инертных газов Ar, Kr, Xe с низким содержанием доноров CCl<sub>4</sub>, SF<sub>6</sub>, C<sub>3</sub>F<sub>7</sub>I ( $P_{\text{донора}} \sim 0,1 \div 1,0$  Торр). Экспериментальные исследования спектрально-временных характеристик люминесценции были выполнены при давлениях тяжелого инертного газа в смеси от 15 Тор до 1900 Тор при общем давлении (в случае добавки третьего газа Ar) не более 1900 Торр.

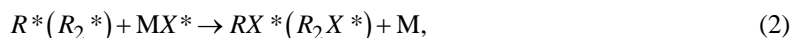
## 2. Механизмы образования эксимерных молекул при возбуждении плотных газовых смесей заряженными частицами высокой энергии

При прохождении заряженной частицы высокой энергии через газовую среду вся её кинетическая энергия расходуется на образование ионов и возбужденных атомов газовой среды. Согласно эмпирической формуле Плацмана [7], расход энергии частицы на ионизацию и возбуждение атомов среды (в расчете на один образовавшийся ион) распределяется как:

$$w = E_0/N_i = E_i + E_{ex} 0,85 I (N_{ex}/N_i) + \varepsilon \quad (1)$$

Здесь  $w$  – энергия образования одной пары ионов;  $E_0$  – энергия частицы;  $N_i$  и  $N_{ex}$  – полное число созданных ионов и возбужденных атомов;  $\varepsilon = 0,31 \cdot I$  – средняя энергия вторичных электронов;  $E_i = 1,06 \cdot I$  и  $E_{ex} = 0,85 \cdot I$  – энергия, расходуемая на ионизацию и возбуждение атома;  $I$  – потенциал ионизации газа. Для инертных газов  $N_{ex}/N_i \approx 0,4$ .

Таким образом, на один образовавшийся ион приходится 0,4 возбужденных атома. Эти возбужденные атомы могут участвовать в гарпунной реакции (2), образуя двухатомные и трехатомные эксимерные молекулы:



и в реакциях типа (3) без образования эксимерных молекул:



Здесь  $R$  – атомы Хе или Кг,  $MX$  – молекула донора атомов галогена ( $CCl_4$ ,  $SF_6$ ,  $C_3F_7I$ ).

Другим каналом образования эксимерных молекул являются реакции ион-ионной рекомбинации (4) и (5) положительных ионов  $R^+(R_2^+)$  инертного газа и отрицательных ионов молекул донора атомов галогена:



Следует отметить сильную зависимость формы спектров и интенсивности эксимерных полос двухатомных и трехатомных молекул от давления Хе или Кг: при высоких давлениях в спектре преобладает  $4^2G-1^2G$  полоса трехатомных эксимерных молекул ( $Xe_2Cl^*$ ,  $Kr_2F^*$ ,  $Xe_2I^*$ ) в то время как при давлениях меньших 0,5 атм, – В-Х полосы двухатомных молекул ( $XeCl^*$ ,  $KrF^*$ ,  $XeI^*$ ). Это связано с различными плазмохимическими каналами образования эксимерных молекул: двухатомные молекулы эффективно образуются при низких давлениях Хе (или Кг) за счет реакции ион-ионной рекомбинации (4) с участием атомарных ионов  $Xe^+$  или  $Kr^+$ , в то время как трехатомные молекулы – при высоких давлениях за счет ион-ионной рекомбинации молекулярных ионов (5), поскольку при высоких давлениях атомарные ионы за счет реакции конверсии (6) превращаются в молекулярные ионы:



Относительный вклад каждого из этих каналов в образование эксимерных молекул зависит от давления газовой среды и её состава. В работе [8] отмечается, что при низких давлениях газовой смеси образование эксимерных молекул осуществляется преимущественно через гарпунные реакции (2), а ионные каналы (4) и (5) эффективно работают при высоких давлениях.

Высокие концентрации донора атомов галогена снижают вклад реакций ион-ионной рекомбинации. Для смеси Хе- $CF_3I$ , например, это концентрации  $CF_3I$ , превышающие 0,15 Торг [9]. Эффект связан со столкновительным тушением положительных ионов  $R^+(R_2^+)$  молекулами донора  $MX$ :



В двойных Хе- $CCl_4$ , Кг- $SF_6$ , Хе- $C_3F_7I$  и тройных газовых смесях (с добавками Аг или Кг) основным каналом образования эксимерных молекул являются реакции (4) и (5) ион-ионной ре-

комбинации положительных атомарных и молекулярных ионов инертного газа с отрицательными ионами  $\text{CCl}_4^-$ ,  $\text{SF}_6^-$  и  $\text{C}_3\text{F}_7\text{I}^-$ .

Особенностью плазмы, образующейся при торможении высокоэнергетичных заряженных частиц с энергией в сотни кэВ и выше в плотном газе, является её трековая структура, когда вся кинетическая энергия отдельной частицы выделяется в узкой области пространства вдоль траектории её движения в виде образования цепочки ионизированных и возбужденных атомов газа и электронов [10]. Такая плазма не является пространственно однородной, а состоит из множества отдельных треков – областей цилиндрической формы длиной около нескольких см и радиусом  $\sim 10^{-3}$  см, содержащих положительные ионы и электроны [11, 12]. В остальной области пространства вне треков плазмы нет, там находится невозбужденный газ.

Состав образующейся трековой плазмы (концентрация и температура электронов в треке, концентрация положительных ионов) зависит от суммарного давления и состава газовой среды и при умеренных накачках очень слабо зависит от удельного энерговыклада в газ, т. к. при увеличении уровня накачки увеличивается только число отдельных треков в единице объема. Характерная величина концентрации электронов в треке –  $10^{13}$ – $10^{14}$   $\text{см}^{-3}$  [10]. Состав плазмы остается постоянным до тех пор, пока треки не начнут перекрываться между собой, что соответствует очень высоким уровням накачки. Концентрацию положительных ионов и электронов в треке можно оценить с помощью формулы Бете для среднего числа ионов, образованных на 1 см пути в веществе.

Трек не является стабильным образованием. В пределах объема трека происходят все основные плазмохимические процессы преобразования кинетической энергии заряженной частицы высокой энергии в световое излучение. Исследования пространственно-временной эволюции треков тяжелых заряженных частиц в чистых газах (He, Xe) на ранней стадии их образования и до времен  $\sim 10^{-8}$  с были выполнены в работах [10–12]. При наличии в смеси электроотрицательного газа MX в треке происходит прилипание электронов к молекулам этого газа, сопровождающееся образованием отрицательного иона:



Согласно [13], сечение и константа скорости прилипания электронов к молекулам  $\text{CCl}_4$ ,  $\text{SF}_6$ ,  $\text{C}_3\text{F}_7\text{I}$  около  $\sim 10^{-14}$   $\text{см}^2$  и  $\sim 10^{-7}$   $\text{см}^3/\text{с}$ , а образовавшийся комплекс живет  $\sim 10^{-5}$  с. Поэтому при атмосферном давлении газовой смеси процесс образования отрицательных ионов донора занимает всего несколько нс при парциальном давлении электроотрицательного донора  $\sim 0,03$  Торр [13]. При отсутствии в плазме электронов ион-ионная рекомбинация должна осуществляться за счет взаимной диффузии ионов различного знака в пределах объема трека. Коэффициент рекомбинации положительных и отрицательных ионов при условии равномерного распределения ионизации по всему объему имеет величину  $\sim 10^{-6} \div 2 \cdot 10^{-6}$   $\text{см}^3$ , а в треках заряженных тяжелых ядерных частиц из-за сильной локальной неоднородности распределения ионов скорость рекомбинации значительно возрастает. Ион-ионная рекомбинация в треке положительных ионов  $\text{Xe}^+$ ,  $\text{Kr}^+$ ,  $\text{Xe}_2^+$ ,  $\text{Kr}_2^+$  отрицательными ионами галогена приводит к образованию двухатомных и трехатомных эксимерных молекул. При высоких давлениях газовой среды коэффициент диффузии ионов мал и это должно проявляться в замедлении нарастания переднего фронта импульса люминесценции и во временной задержке появления светового импульса эксимерных молекул. Увеличение концентрации электроотрицательного газа  $\text{CCl}_4$ ,  $\text{SF}_6$ ,  $\text{C}_3\text{F}_7\text{I}$   $\text{SF}_6$  в смеси, превышающей концентрацию электронов в треке, не может повысить концентрацию отрицательных ионов, т. к. процесс образования отрицательных ионов определяется наличием электронов в треке. Эта величина является в своем роде константой, слабо зависящей от уровня накачки. Поэтому оптимальная концентрация электроотрицательного газа в смеси должна быть сравнима с концентрацией электронов в треке, и её избыток приводит только тушению образовавшихся эксимерных молекул. Это видно из приведенных в настоящей статье рисунков.

### 3. Экспериментальные результаты

Спектры спонтанного излучения Xe- $\text{CCl}_4$ , Kr- $\text{SF}_6$ , Xe- $\text{C}_3\text{F}_7\text{I}$  смесей высокого давления различного состава при возбуждении пучком быстрых электронов с энергией 150 кэВ приведены на рис. 1 – плотных газовых смесях инертных газов Ar, Kr, Xe с низким содержанием доноров  $\text{CCl}_4$ ,  $\text{SF}_6$ ,  $\text{C}_3\text{F}_7\text{I}$  ( $P_{\text{донора}} \sim 0,1 \div 1,0$  Торр) рис. 3. Все спектры содержат молекулярные полосы В-Х переходов двухатомных эксимерных молекул  $\text{XeCl}^*$ ,  $\text{KrF}^*$ ,  $\text{XeI}^*$  с максимумами при  $\lambda_{\text{max}} = 308$  нм,

248 нм и 253 нм, полосы  $4^2\Gamma - 1^2\Gamma$  переходов трехатомных эксимерных молекул с максимумами при  $\lambda_{\max} = 486$  нм, 404,7 нм и 352 нм соответственно, и (6p-6s) линии атомарного XeI (или 5p-5s KrI) в инфракрасной области спектра. В крайней ультрафиолетовой области (200–250 нм) в спектрах присутствуют слабые линии D-X переходов двухатомных молекул, а в ближнем ультрафиолете – относительно слабые полосы C-A переходов двухатомных молекул.

Форма спектров сильно зависит от содержания донора атомов галогена в смеси: при уменьшении парциального давления донора от 1 Торр до  $0,035 \pm 0,075$  Торр, интенсивность  $4^2\Gamma-1^2\Gamma$  полосы трехатомных эксимерных молекул  $\text{Xe}_2\text{Cl}^*$ ,  $\text{Kr}_2\text{F}^*$ ,  $\text{Xe}_2\text{I}^*$  возрастает в несколько раз при незначительном увеличении интенсивности В-Х полос молекул  $\text{XeCl}^*$ ,  $\text{KrF}^*$ ,  $\text{XeI}^*$  (рис. 1–3)

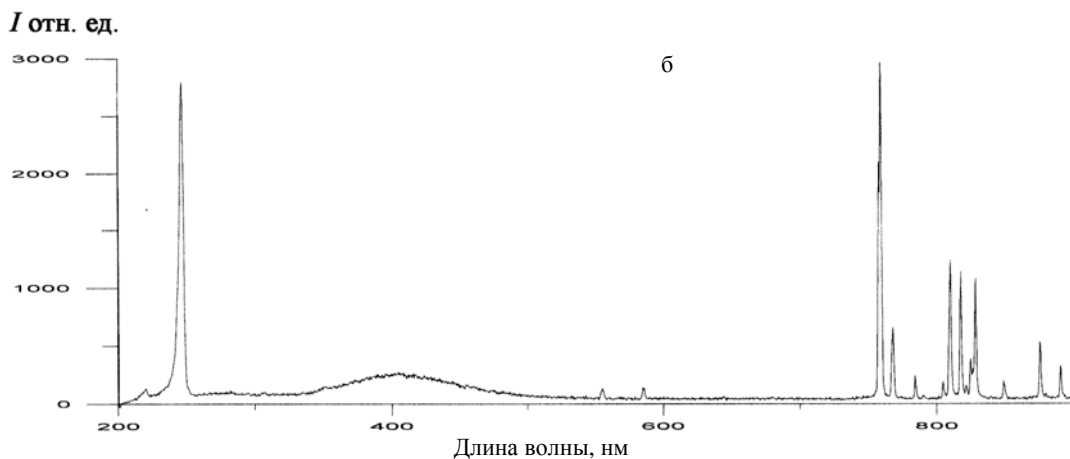
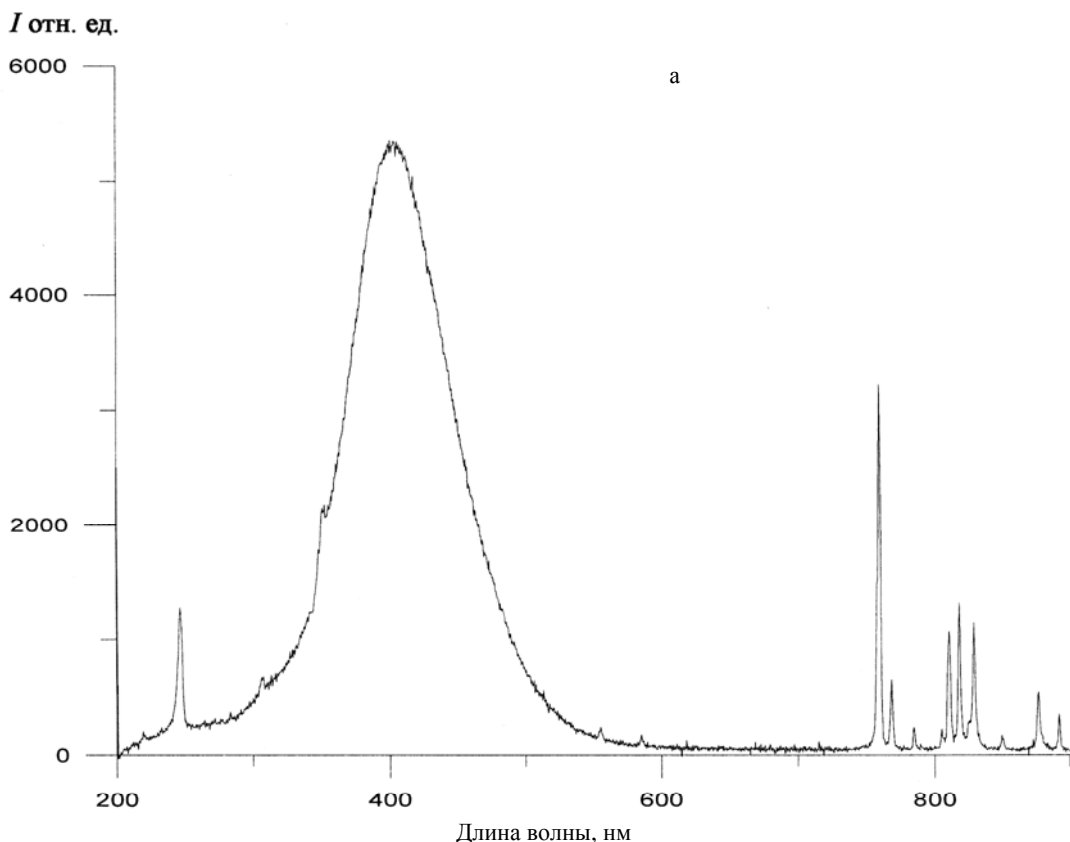


Рис.2. Спектры спонтанного излучения (Kr-SF<sub>6</sub>) смесей при возбуждении пучком быстрых электронов с энергией 150 кэВ. Состав смесей: а – Kr -1900 Торр, SF<sub>6</sub>- 0,2 Торр; б – Kr -190 Торр, SF<sub>6</sub>- 0,2 Торр

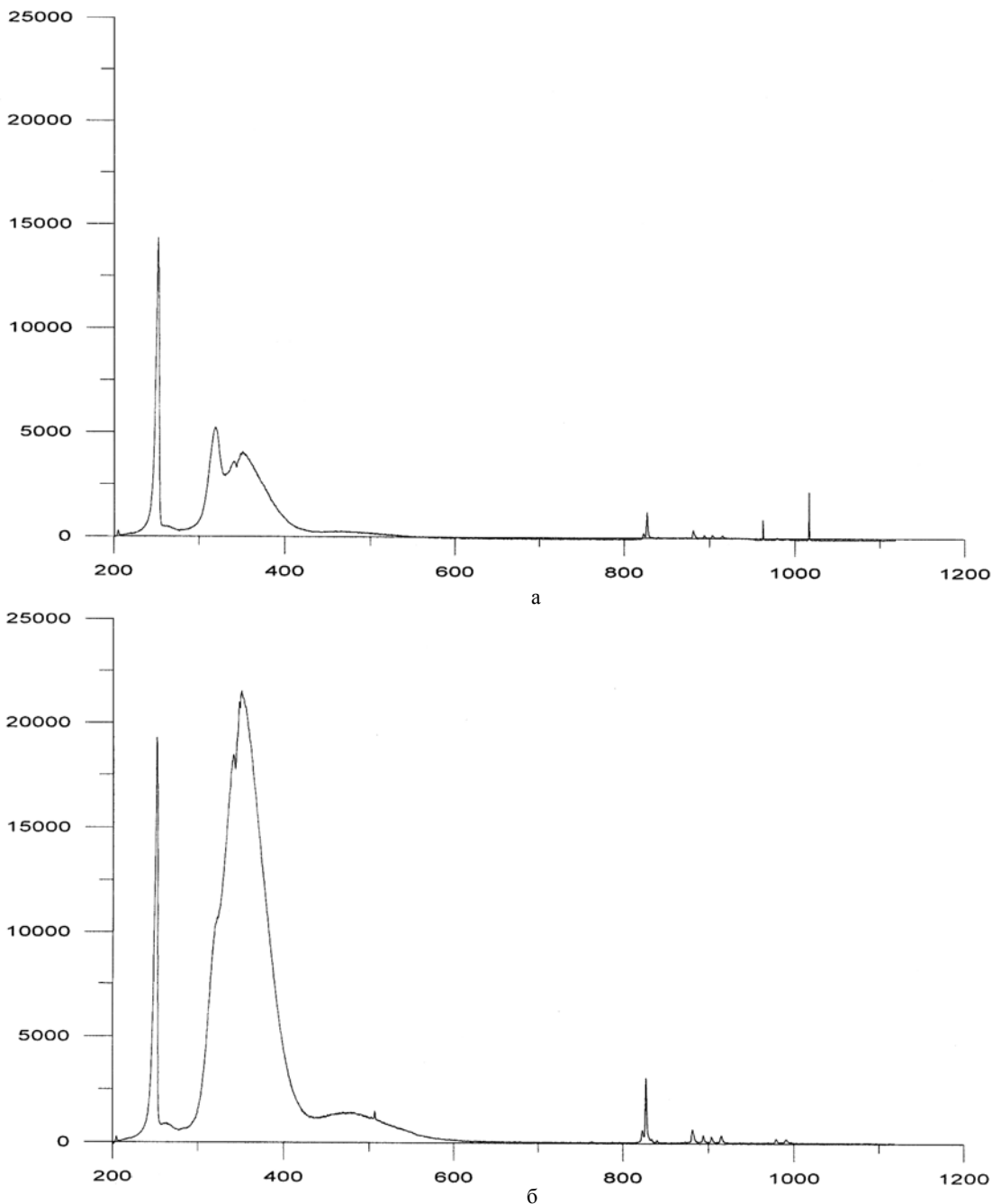


Рис. 3. Спектры спонтанного излучения (Xe-C<sub>3</sub>F<sub>7</sub>I) смесей при возбуждении пучком быстрых электронов с энергией 150 кэВ. Давление Xe – 1140 Торр; C<sub>3</sub>F<sub>7</sub>I – 1,0 Торр (а) и 0,075 Торр (б)

Интенсивности эксимерных полос зависят также от содержания ксенона (криптона): при низких давлениях Xe (Kr) в спектре преобладают молекулярные полосы В-Х и С-А двухатомных эксимерных молекул, в то время как при высоком давлении Xe (Kr) преобладают полосы трехатомных молекул Xe<sub>2</sub>Cl<sup>\*</sup>, Kr<sub>2</sub>F<sup>\*</sup>, Xe<sub>2</sub>I<sup>\*</sup>. Максимальная интенсивность В-Х полос достигается в смесях с содержанием Xe или Kr в смеси не более 15 Торр и молекул донора ~0,05 Торр. Для повышения уровня энерговклада в такие смеси при накачке заряженными частицами высокой энергии необходимо вводить третий газ – обычно Ar высокого давления.

#### 4. Заключение

Проведенные измерения люминесценции плотных газовых смесей инертных газов Ar, Kr, Xe с низким содержанием доноров  $\text{CCl}_4$ ,  $\text{SF}_6$ ,  $\text{C}_3\text{F}_7\text{I}$  ( $P_{\text{донора}} \sim 0,1 \div 1,0$  Торр) различного состава показали, что основным каналом образования двухатомных и трехатомных эксимерных молекул является реакция ион-ионной рекомбинации положительных ионов  $\text{Xe}^+$  ( $\text{Kr}^+$ ) и  $\text{Xe}_2^+$  ( $\text{Kr}_2^+$ ) с отрицательными ионами донора атомов галогена. Для получения максимального световыхода (В-Х), (С-А), ( $4^2\text{Г}-1^2\text{Г}$ ) полос эксимерных молекул оптимальная концентрация донора атомов галогена в смеси должна быть сравнима с начальной концентрацией электронов в треке ядерной частицы. Повышенная концентрация молекул донора в смеси (более 50–100 мТор) не приводит к увеличению числа отрицательных ионов из-за отсутствия свободных электронов в треке, но вызывает сильное столкновительное тушение эксимерных полос молекулами донора (коэффициент скорости реакций тушения  $\sim 2 \cdot 10^9$  см<sup>3</sup>/с).

#### Список литературы

1. Брау Ч. // В кн. Эксимерные лазеры / Под ред. Ч. Роудза. М.: Мир, 1981. С. 118.
2. Tittel F. K., Smayling M., Wilson W. L., Marowsky G. // Appl. Phys. Lett. 1980. V. 37. № 10. P. 862–864.
3. Kannari F., Sada A., Obara M., Fujioka T. // Appl. Phys. Lett. 1984. V. 45. N. 4. P. 305.
4. Kimura W. D., Salesky E. T. // Appl. Phys. Lett. 1986. V. 48. N. 14. P. 897.
5. Mikyeev L. D., Tchereiskine V. I., Uteza O. P., Sentis M. L. Progress in Quantum Electronics. 2012. V. 36. P. 98–142.
6. Boichenko A. M., Tarasenko V. F., Yakovlenko S. I. Laser Physics. 2000. V. 10. N. 6. P. 1159–1187.
7. Platzman R. L. // Int. J. Appl. Radiat. Isot. 1961. V. 10. P. 116.
8. Бойченко А. М., Ломаев М. И., Панченко А. М., Соснин Э. А., Тарасенко В. Ф. Ультрафиолетовые и вакуумно-ультрафиолетовые эксилампы: физика, техника и применение. Томск: STT, 2011. С. 512.
9. Grieser F., Shimamori H. // J. Phys. Chem. 1980. V. 84. P. 247–50.
10. Будник А. П., Добровольская И. В. Материалы II Междунар. конф. «Физика ядерно-возбуждаемой плазмы и проблемы лазеров с ядерной накачкой 26–30 сент. 1994 / Арзамас-16: ВНИИЭФ, 1995. Т. 1. С. 97–102.
11. Будник А. П., Вакуловский А. С. То же. / Арзамас-16: ВНИИЭФ, 1995. Т. 1, С. 75–89.
12. Будник А. П., Вакуловский А. С., Соколов Ю. В. II Междунар. конф. «Физика ядерно-возбуждаемой плазмы и проблемы лазеров с ядерной накачкой 26–30 сент. 1994 / г. Арзамас-16. Т. 1. С. 90–96.
13. Райзер Ю. П. Физика газового разряда. М., «Наука», Главная редакция физико-математической литературы, 1987. С. 591.