

02;03;04;07;12

Фоторезонансная ионизация газовых сред излучением эксимерных лазеров

© Б.А. Князев, П.И. Мельников, Г. Блюм,
А.А. Дорошкин, А.Н. Матвеевко

Новосибирский государственный университет
ГНЦ Институт ядерной физики им Г.И. Будкера, Новосибирск

Поступило в Редакцию 24 декабря 1996 г.

Найдены двадцать пять элементов, резонансные линии которых перекрываются с полосами генерации мощных импульсных ультрафиолетовых газовых лазеров или лежат в непосредственной близости от них, что позволяет использовать механизм резонансного насыщенного возбуждения с передачей энергии затравочным электронам (LIBORS) для ионизации паров этих элементов. Обнаружено, что для тантала и урана существуют резонансные переходы у атома и иона, которые возбуждаются одним и тем же лазером (криптон-фторовым и ксенон-фторовым, соответственно). Предложено использовать эти элементы в качестве "катализаторов" для фоторезонансной "каталитической" ионизации (CATRION) плотных многокомпонентных газовых смесей. Проведены эксперименты по облучению криптон-фторовым лазером расширяющихся облаков пара различного элементного состава, созданных путем испарения мишеней рубиновым лазером. Съемки с помощью электронно-оптического преобразователя, измерения градиента показателя преломления по отклонению лазерного луча, а также зондовые и спектроскопические измерения свидетельствуют о фоторезонансной ионизации облаков, если они содержат атомы тантала, и об отсутствии влияния лазерного излучения в противоположном случае.

Ионизация плотных паров металла в поле интенсивного резонансного лазерного излучения была обнаружена в работе [1]. Объяснение механизма этого многоступенчатого процесса было дано в работах [2,3]. Процесс начинается с нагрева затравочных электронов за счет сверхупругих столкновений с возбужденными до насыщения резонансного уровня атомами и/или резонансного вынужденного тормозного поглощения фотонов. Электрон-атомные столкновения приводят к заселению верхних возбужденных уровней. Завершается процесс быстрой ударной ионизацией газа нагретыми электронами. Естественно, что длительность

лазерного импульса, плотность мощности излучения и плотность газа должны быть достаточны для перехода процесса в фазу "взрывной" ионизации. Этот вид фоторезонансной ионизации, получивший название LIBORS, Laser Ionization Based on Resonance Saturation, широко исследовался в последующие годы при возбуждении стационарных паров металлов первой и второй групп таблицы Менделеева узкополосным излучением перестраиваемых лазеров на красителях. Позднее, LIBORS был использован на практике для формирования литиевой плазмы на аноде мощного импульсного ускорителя ионов PBFA-II [4].

Достоинством фоторезонансной ионизации является полная "бесконтактность", а температура ионов, оказывается существенно ниже, чем при создании плазмы другими методами. Возможности практического использования "классического" LIBORS, однако, ограничены, так как ресурс работы и надежность лазеров на красителях с ламповой накачкой не слишком велики, да и резонансные переходы у очень многих элементов лежат в ультрафиолетовой (или даже вакуумной ультрафиолетовой) области, где мощные источники перестраиваемого излучения отсутствуют. К счастью, для более чем двадцати элементов имеются резонансные переходы, которые близки или совпадают с полосами генерации мощных импульсных газовых лазеров. Ранее такие совпадения были известны, например, для Al [5] и Fe [6]. Положение этих переходов относительно спектров генерации азотного и эксимерных лазеров показано на рис. 1, а их атомные характеристики сведены в таблицу в работе [7]. Видно, что среди этих элементов имеются как весьма распространенные элементы, так и представляющие особый интерес для многих приложений (например, уран и мышьяк). Поскольку длины волн генерации указанных лазеров лежат в ультрафиолетовом диапазоне, рассматриваемый вариант фоторезонансной ионизации может быть назван UV LIBORS.

Существенным преимуществом ультрафиолетового LIBORS является прямая однофотонная фотоионизация резонансно возбужденных атомов излучением возбуждающего лазера (в видимой области это возможно только для небольшого числа элементов). Этот механизм не столь эффективен, как сам LIBORS, но может существенно снизить требования к начальному числу затравочных электронов в газе и ускорить ионизацию. Вторым обстоятельством является большая спектральная ширина излучения эксимерных лазеров, близкая к 1 нм, которую трудно сузить и перестраивать (в пределах указанной на рис. 1 полосы флуоресценции) без существенных энергопотерь, что

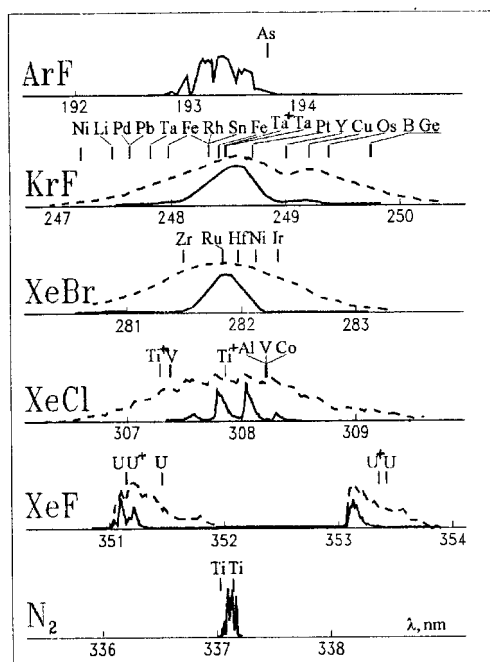


Рис. 1. Спектры генерации эксимерных и азотного лазеров (сплошные кривые) и положение резонансных линий атомов и некоторых ионов. Пунктирные кривые — спектры люминесценции соответствующих эксимерных молекул.

мало приемлемо для возможных приложений. Скорее всего, однако, сужения спектра не требуется, поскольку ширина резонансного перехода атома в описываемом случае может сама достигать порядка 1 нм как за счет уширения давлением [8], так и динамического полевого уширения [9]. Существенное уширение резонанса наблюдалось, например, в [4,5]. Это означает, что не исключена возможность фоторезонансной ионизации атомов, переходы которых лежат в ближайшей окрестности спектра генерации. Указанные факторы могут существенно облегчить реализацию UV LIBORS с эксимерным лазером и обеспечить высокую эффективность процесса.

Ввиду значительной трудности расчетов и отсутствия многих данных для сложных атомных систем, экспериментальные исследования являются наиболее адекватным способом поиска оптимальных параметров газа и излучения для реализации максимальной эффективности ионизации. Исходя из условий насыщения атомных переходов, можно заранее утверждать, что оптимальная спектральная плотность мощности F_{opt} лазерного излучения по порядку величины не должна сильно отличаться от интенсивности насыщения перехода

$$F_{\lambda}^s = \frac{16\pi^2 \hbar c^2}{\lambda^5} \left(1 + \frac{\sum_k A_{2k}}{A_{21}} \right) = \frac{1.4 \cdot 10^{14} \xi}{\lambda^5 [\text{нм}]} \left[\frac{\text{кВт}}{\text{см}^2 \cdot \text{нм}} \right],$$

где A_{lm} — коэффициенты Эйнштейна, индексы 1 и 2 обозначают основной и резонансный уровни, k — промежуточные уровни (если они имеются), а через ξ обозначено выражение в круглых скобках. Величина F_{λ}^s очень сильно зависит от длины волны и для КгF лазера равна 150 кВт/см²нм, что вполне достижимо для обычных лазеров.

Высокая надежность эксимерных лазеров, большой срок службы, способность работать с частотой порядка 100 Гц дают основание предположить, что UV LIBORS может стать удобным средством создания "холодной" плазмы приведенных на рис. 1 элементов для прикладных целей (например, ионных источников). Более того, с помощью UV LIBORS можно создавать плазму практически любого элементного состава, если по условиям задачи в ней допустимо присутствие некоторого количества одного из упомянутых ранее элементов, поглощающего лазерное излучение и служащего как бы "катализатором" ионизационных процессов. Этот метод, который можно условно назвать "каталитической резонансной ионизацией" (CATRION), приемлем, например, для ионных источников с последующей сепарацией ускоренных ионов, а также для создания анодной плазмы в импульсных ускорителях легких ионов для термоядерного синтеза (в последнем случае небольшой процент существенно более тяжелых примесей допустим).

Оптимизация условий для (CATRION) требует специальных исследований процессов в многокомпонентных средах в поле резонансного излучения, однако а priori видна единственная причина, которая может оказаться критической для реализации метода. Это — большая вероятность ионизации электронами атомов элемента-катализатора (вследствие высокой заселенности резонансного уровня в поле лазерного

излучения) по сравнению с остальными атомами смеси, что может привести к исчезновению поглощающих лазерное излучение атомов и прекращению процесса ранее, чем ионизация среды будет завершена¹. Имеются, однако, два элемента, уран и тантал, у которых резонансные переходы и атома, и однократно заряженного иона возбуждаются одним эксимерным лазером (XeF и KrF, соответственно). При использовании этих элементов в качестве катализатора, и после полной ионизации последнего, процесс ионизации газа будет продолжаться за счет нагрева электронов в их столкновениях с резонансно возбужденными ионами катализатора, ионизация которых затруднена из-за более высокого потенциала ионизации.

Эксперименты по испарению сфокусированным лучом KrF лазера однокомпонентных мишеней из тантала и молибдена в вакууме показали, что пороговая плотность мощности излучения, при которой ленгмюровские зонды регистрируют существенную ионизацию разлетающихся паров, для тантала в 1.6 раза ниже, чем для молибдена, хотя в соответствии с термодинамическими и атомными характеристиками этих элементов, без учета резонансных эффектов, для тантала она должна быть выше. Ранее резонансные эффекты при облучении алюминия XeCl лазером наблюдались, например, в [5]. Естественно, использование одного лазерного импульса и для испарения, и для ионизации исключает, как показано в [10], возможность оптимизации процесса, поэтому в последующих экспериментах облако пара создавалось независимо, путем испарения мишени излучением рубинового лазера (0.2 Дж, 25 нс), а затем, с регулируемой задержкой, облучалось KrF лазером (0.2 Дж, 150 нс).

Плоская мишень заданного элементного состава располагалась в вакуумном объеме. Излучение рубинового лазера падало на мишень по нормали, а широкий пучок криптонфторового лазера облучал облако сбоку, под углом от 50° до 0°. Для исследования расширяющегося облака газа (плазмы) использовались три ленгмюровских зонда, цилиндр Фарадея, вторично-эмиссионный детектор, двухсекционный фотодиод, измеряющий отклонение в облаке луча HeNe лазера [11], электронно-оптический преобразователь ПИМ-104В, и два монохроматора, один из которых (с фотоумножителем) служил монитором

¹ Заметим здесь, что этот эффект можно, в принципе, использовать для создания лазерного источника отрицательных ионов, обеспечив (при распаде плазмы) условия для прилипания электронов к специально добавленным электроотрицательным атомам.

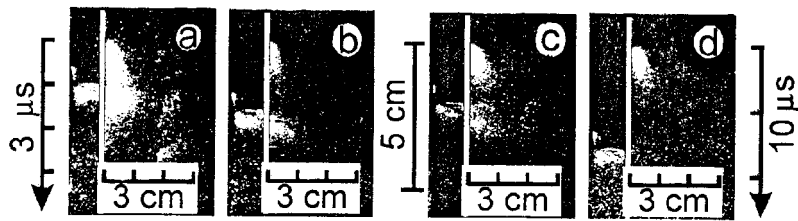


Рис. 2. Кадровая съемка (с одновременным вертикальным смещением изображения) газового облака, испаренного импульсом рубинового лазера из танталовой мишени в вакууме (положение мишени светлой полосой). Расширяющееся облако облучается широким пучком КгF лазера, время запуска которого видно по блику "позади" мишени.

интенсивности, а другой (с диссектором ЛИ-602) — ширины спектральных линий. Пространственное распределение интенсивности рубинового и HeNe лазеров измерялось ПЗС-линейкой. В экспериментах использовались как монокомпонентные (Ta, Ti, Mo, Pb, Fe, Sn, Cu, Ni), так и двухкомпонентные (TaTi, Ta-B, Fe-B) мишени. Последние были изготовлены прессованием из порошков либо во взрывной камере (TaTi), либо при высокой температуре. Ниже приводятся только результаты с мишенями, содержащими тантал и титан.

После испарения мишени рубиновым лазером, облака пара с полным числом частиц N_0 до $3 \cdot 10^{16}$ разлетаются в вакуум с характерными скоростями 0.1–1 см/мкс. Начальная степень ионизации облака зависит от плотности мощности падающего излучения и при "оптимальной" плотности мощности [13] соответствует температуре испарения материала мишени. Поскольку необходимую для реализации механизма LIBORS за время порядка 0.1 мкс плотность облака можно оценить величиной $10^{15} - 10^{16} \text{ см}^{-3}$, задержка ионизирующего импульса КгF лазера не должна превышать нескольких микросекунд. Действительно, кадровые съемки в видимом диапазоне с помощью электронно-оптического преобразователя, сигналы ленгмюровских зондов и спектроскопических диагностик подтверждают возникновение дополнительной ионизации в прилегающей к мишени части облака в случае танталовой и тантал-титановой мишеней, и полное отсутствие таковой в случае титанового облака.

На рис. 2 представлены фотографии свечения облака, полученные с помощью электронно-оптического преобразователя, работавшего в смешанном, кадрово-хронографическом режиме. Облако отображалось на фотокадод электронно-оптического преобразователя, а его электронное изображение на выходе смещалось в течение экспонирования в направлении, параллельном мишени (на рисунке вниз), путем подачи на отклоняющие пластины линейно нарастающего напряжения. В первый момент, после облучения мишени рубиновым лазером, наблюдается расширение слабоионизованного облака пара, излучающего (как показывают спектроскопические диагностики) в непрерывном спектре. Это излучение связано с высокой (порядка температуры испарения материала) температурой облака и спадает за время порядка микросекунды из-за спада температуры и плотности облака. При не слишком высокой интенсивности излучения рубинового лазера облако имеет незначительную степень ионизации, что регистрируется по сигналам лентгмюровских зондов.

Облучение КгF лазером облака, не содержащего элемент-катализатор (Ti мишень), не приводит к изменению наблюдаемой картины [11, рис. 5]. Если же облако содержит тантал (Ta и TaTi мишени), то при задержке импульса КгF лазера, не превышающей 5 мкс, наблюдается повторная, быстро затухающая вспышка свечения пара, которая в начальный момент содержит интенсивное непрерывное, а на стадии распада — линейчатое, излучение атомов и ионов. Наблюдаемое излучение не может быть рассеянным лазерным излучением, которое не пропускать стеклянной оптикой, а связано с дополнительной ионизацией облака нагретыми электронами. Это подтверждается появлением второго пика, несколько превышающего по амплитуде основной пик, на "хвостах" сигналах зондов [11, рис. 7] для тантал-титановой мишени, отсутствием такого пика для титановой, а также спектроскопическими измерениями. При увеличении задержки запуска КгF лазера второй пик зондового тока сдвигается правее, а его величина уменьшается. Небольшой рост зондового тока во втором пике не должен вводить в заблуждение, так как даже при полной ионизации облака характерное время трехчастичной рекомбинации при плотности $\sim 10^{15} \text{ см}^{-3}$ и температуре $\sim 0.5 \text{ эВ}$ не превышает микросекунды [13], и на стадии разлета в облаке устанавливается достаточно низкая, мало зависящая от исходной, степень ионизации. Наиболее надежным свидетельством ионизации облака излучением эксимерного лазера является наблюдае-

мая в эксперименте смена направления (с одновременным увеличением угла) отклонения луча HeNe лазера [14, рис. 5], проходящего на расстоянии 1 мм от поверхности мишени, в момент облучения облака KrF лазером. Величина "положительного" отклонения (электронами) оказывается в два–три больше, чем можно ожидать из соотношения поляризуемостей атома тантала в основном состоянии ($+7 \text{ \AA}$ [15]) и электрона (-28 \AA^3), что может быть связано, например, с наличием растворенных в тантале (следовательно, появляющихся и в облаке) газов. Через сто наносекунд после импульса отклонение возвращается к прежнему "отрицательному" значению, вероятно, как и следует ожидать при оцененной плотности облака $\sim 10^{16} \text{ см}^{-3}$, вследствие быстрой трехчастичной рекомбинации.

Согласно оценкам, не приводимым из-за недостатка места, прямая фотоионизация резонансно возбужденных атомов не может обеспечить сколько-нибудь существенную ионизацию облака, тогда как совокупность всех экспериментальных фактов подтверждает радиационно-столкновительный характер ионизационных процессов.

Авторы благодарят И.М. Бушуева и Арт. Иванова за помощь в эксперименте.

Работа выполнена на установке КАТРИОН (рег. номер 06–06) при финансовой поддержке Миннауки России, гранта 95–0–5.2–185 и программы "Университеты России" ГКВШ РФ, а также Forschungszentrum Karlsruhe.

Список литературы

- [1] *Lucatoro T.B., Mc Ilrath T.J.* // Phys. Rev. Lett. 1976. V. 7. N 76. P. 280.
- [2] *Measures R.M., Cardinal P.G.* // Phys. Rev. A. 1981. V. 23. N 2. P. 804.
- [3] *Касьянов В.А., Старостин А.Н.* В сб. Химия плазмы. В. 16. с. 67. М: Энергоатомиздат, 1990.
- [4] *Bieg K.V., Tisone G.C., Lokner T.R.* et al. 8th Int. Conf. on High-Power Particle Beams, Novosibirsk, 1990. World Scientific. V. 2. P. 933.
- [5] *Gaidarenko D.V., Leonov A.G.* // Laser Physics. 1992. V. 2. N 6. P. 901.
- [6] *Yoshida H., Tamaki R., Ninomiya H.* // Optics Commun. 1993. V. 102. N 4. P. 461.
- [7] *Knyazev B.A., Melnikov P.I., Bluhm H.* Preprint of Budker Institute of Nuclear Physics, Novosibirsk, 94–8 (1994).

- [8] *Вайнштейн Л.А., Собельман И.И., Юков Е.А.* Возбуждение атомов и уширение спектральных линий. М.: Наука, 1979.
- [9] *Акулин В.М., Карлов Н.В.* Интенсивные резонансные взаимодействия в квантовой электронике. М.: Наука, 1987.
- [10] *Князев Б.А., Лебедев С.В., Меклер К.И.* // ЖТФ. 1986. V. 56. N 7. P. 1319.
- [11] *Bushujev I.M., Doroshkin A.A., Ivanov Art.A.* et al. // Proc. SPIE. 1995. V. 2619. P. 216.
- [12] *Анисимов С.И., Имас Ю.А., Романов Г.С., Ходыко Ю.В.* Действие мощного излучения на металлы. М.: Наука, 1970.
- [13] *Райзер Ю.П.* // Физика газового разряда. М.: Наука, 1987.
- [14] *Князев В.А., Melnikov P.I., Doroshkin A.A.* et al. Proc. 11th Internat. Conf. on High Power Particle Beams, Prague. 1996. V. 2. P. 1195.
- [15] *Fraga S., Muszyńska J.* In: Physical sciences data 8. Atoms in external fields. Elsevier. 1981. P. 53.