

УДК 544.522.14

## ТЕМПЕРАТУРНЫЕ ЗАВИСИМОСТИ СЕЧЕНИЙ ФОТОДИССОЦИАЦИИ В КРИПТОНОВОЙ ПЛАЗМЕ

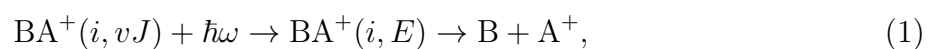
К. С. Кислов, А. А. Нарич, В. С. Лебедев

*В широком диапазоне газовых температур исследованы особенности в спектрах фотодиссоциации молекулярных ионов  $Kr_2^+$ . Установлено, что повышение газовой температуры приводит к радикальному изменению частотной зависимости сечений процесса. Дано простое физическое объяснение температурной зависимости сечений.*

**Ключевые слова:** фотодиссоциация, плазма, молекулярные ионы, криптон.

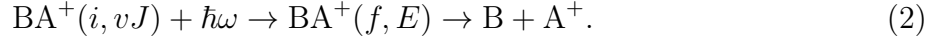
*Введение.* Плазмы смесей благородных газов являются одними из самых распространенных активных сред мощных источников излучения УФ- и ВУФ-диапазонов [1–4]. Хорошо известно [5], что наряду с нейтральными частицами и атомными ионами, в таких плазмах присутствуют гомоядерные и гетероядерные молекулярные ионы. Вследствие наличия дополнительных степеней свободы, связанных с ядерным движением, а также возможности неадиабатических переходов, повышающих эффективность обмена энергией между электронами и ядрами, даже относительно малые концентрации молекулярных катионов могут приводить к кардинальному изменению динамики релаксации энергии в плазме [5]. Исследование взаимодействия внешнего электромагнитного поля с молекулярными ионами инертных газов позволяет оптимизировать функционирование существующих источников УФ-излучения и предложить новые схемы реализации таких устройств.

Изучению процессов, происходящих при взаимодействии молекулярных катионов благородных газов с электромагнитным излучением, посвящено значительное количество работ (см., напр., [1, 6, 7]). Наряду с традиционно исследуемыми процессами фотопоглощения на переходах между дискретными состояниями иона, существенное внимание в литературе уделяется экспериментальному [6–8] и теоретическому [9–11] рассмотрению реакции фотодиссоциации (ФД), происходящей либо в результате прямой передачи энергии фотона ядерной подсистеме



ФИАН, 119991 Россия, Москва, Ленинский пр-т, 53; e-mail: kislov93@mail.ru.

либо вследствие перехода электронной оболочки из начального связанного состояния  $U_i(R)$  на отталкивательный терм  $U_f(R)$ ,



Для молекулярного иона  $\text{H}_2^+$  процесс (2) исследовался в ряде работ (см. [12–19] и приведенные там ссылки). В данной работе при различных газовых температурах  $T$  проведено теоретическое исследование реакции (2) в плазме послесвечения разряда в криптоне, содержащей молекулярные ионы  $\text{Kr}_2^+$ . Вследствие относительно невысоких энергий диссоциации  $D_0$  таких ионов увеличение газовой температуры быстро приводит к выполнению условия  $\hbar\omega_e \gtrsim k_B T$ , где  $\hbar\omega_e$  – энергия первого колебательного кванта основного терма иона ( $\hbar\omega_e = 23 \text{ meV}$ ). При этом оказывается эффективно возбуждено огромное число колебательно-вращательных состояний  $vJ$ , что необходимо учитывать при описании процесса фотодиссоциационного поглощения. Будут установлены основные особенности частотных зависимостей сечений фотодиссоциации,  $\sigma_T^{\text{pd}}(\omega)$ , усредненных по Больцмановскому распределению, и проанализировано, как повышение  $T$  сказывается на их форме и величинах.

*Теоретический подход.* Расчеты выполнялись с применением метода, предложенного в работе [10]. Указанный метод основан на использовании теории неадиабатических переходов в приближении линейного пересечения термов [20] для описания динамики реакции (2). В рамках дипольного приближения и квазиклассического подхода для ядерного движения сечение фотодиссоциации иона  $\text{A}_2^+$ , находящегося в состоянии  $vJ$ , может быть записано в виде [10]

$$\sigma_{vJ}^{\text{pd}}(\omega) = \frac{8\pi^2\omega}{3cT_{vJ}} \frac{|d_{fi}(R_\omega)|^2}{\Delta F_{fi}(R_\omega)V_{vJ}(R_\omega)}, \quad (3)$$

$$V_{vJ}(R_\omega) = \sqrt{(2/\mu)(E_{vJ} - U_i(R_\omega) - \hbar^2(J + 1/2)^2/(2\mu R_\omega^2))}, \quad T_{vJ} = \frac{2\pi\hbar}{|E_{vJ} - E_{v\pm 1, J}|}, \quad (4)$$

где  $d_{fi}(R)$  – дипольный матричный элемент перехода,  $\Delta F_{fi}(R)$  – разность наклонов термов  $U_f$  и  $U_i$ ,  $\mu$  – приведенная масса ядер,  $E_{vJ}$  – энергия молекулярного иона в состоянии  $vJ$ , а величина  $R_\omega$  определяется из условия  $\Delta U_{fi}(R_\omega) = U_f(R_\omega) - U_i(R_\omega) = \hbar\omega$ . В случае, когда точка  $R_\omega$  оказывается близка к классической точке поворота для состояния  $R_\omega$ , необходимо пользоваться более точными выражениями, полученными в работе [10].

При выполнении условия  $\hbar\omega_e \gtrsim k_B T$  существенный вклад в полное сечение процесса (2) вносит огромное число состояний  $vJ$ . В такой ситуации для описания реакции необходимо усреднить сечения (3) по функции распределения иона по колебательно-вращательным уровням. С использованием приближения квазиконтинуума состояний и распределения Больцмана в [10] было получено соответствующее выражение,

$$\sigma_T^{\text{pd}}(\omega) = \frac{16\pi^3 \omega R_\omega^2 |d_{fi}(R_\omega)|^2}{3c \Delta F_{fi}(R_\omega) Z_{\text{vr}}} \left( \frac{\mu k_B T}{2\pi\hbar^2} \right)^{3/2} \exp\left(-\frac{D_0 + U_i(R_\omega)}{k_B T}\right) \frac{\gamma(3/2, |U_i(R_\omega)|/k_B T)}{\Gamma(3/2)}, \quad (5)$$

где  $\gamma(3/2, x)$  – неполная нижняя гамма-функция порядка 3/2,  $\Gamma(3/2) = \gamma(3/2, \infty)$ , а  $Z_{\text{vr}}$  – рассчитываемая в приближении квазиконтинуума [21] колебательно-вращательная статистическая сумма иона, отсчитываемая от основного состояния  $v = 0, J = 0$ .

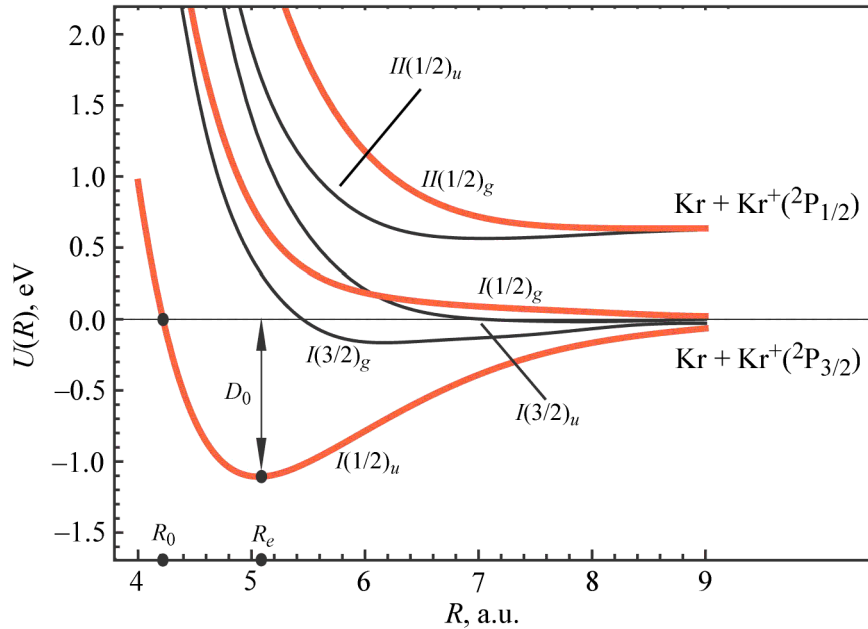


Рис. 1: Структура электронных термов системы  $Kr_2^+$ .

Важно отметить, что по сравнению с молекулярным ионом  $H_2^+$ , результаты для которого приведены в [12–19], гомоядерные ионы инертных газов обладают определенными особенностями. Так, вследствие существенной величины спин-орбитального расщепления, в таких системах могут происходить два типа дипольных переходов:  $I(1/2)_u \rightarrow I(1/2)_g$  и  $I(1/2)_u \rightarrow II(1/2)_g$  (см. рис. 1). Кроме того, расчет величин электронных термов и дипольных матричных элементов переходов значительно осложнен

необходимостью детального учета релятивистских эффектов и представляет собой трудоемкую задачу даже с учетом развития современной вычислительной техники. В данной работе мы использовали наиболее актуальные данные по указанным величинам, полученные в работе [22], что, как показано ниже, позволило получить хорошее количественное согласие результатов теоретического расчета с существующими экспериментальными данными.

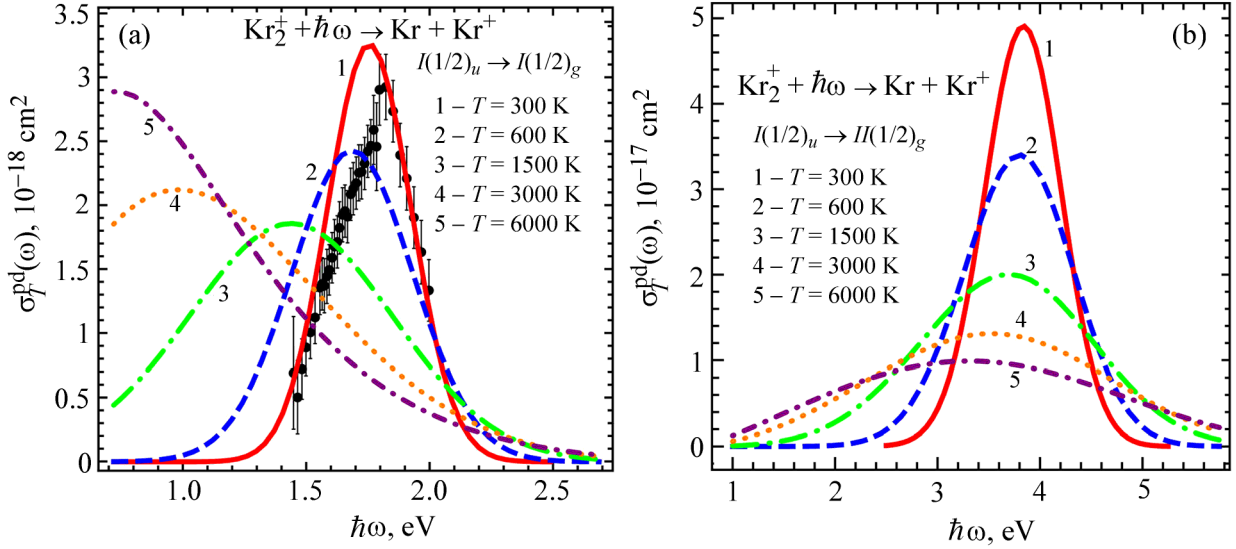


Рис. 2: Сечения фотодиссоциации молекулярного иона  $\text{Kr}_2^+$ . (a) результаты расчетов для переходов  $I(1/2)_u \rightarrow I(1/2)_g$  при различных газовых температурах. Круги – экспериментальные данные [23]; (b) результаты расчетов для переходов  $I(1/2)_u \rightarrow II(1/2)_g$ .

*Результаты.* На рис. 2 представлены результаты расчетов сечений фотодиссоциации  $\sigma_T^{\text{pd}}(\omega)$  ионов  $\text{Kr}_2^+$  для двух типов переходов  $I(1/2)_u \rightarrow I(1/2)_g$  (a) и  $I(1/2)_u \rightarrow II(1/2)_g$  (b) при газовых температурах  $T = 300, 600, 1500, 3000$  и  $6000 \text{ K}$ . Из рис. 2 видно, что эффективность переходов  $I(1/2)_u \rightarrow II(1/2)_g$  при комнатных температурах оказывается примерно на порядок величины выше. В этом случае сечения, представленные на рис. 2(a) и 2(b), имеют форму острого колокола, положение максимума которого определяется в первую очередь параметрами электронных термов и может быть оценено из условия того, что неадиабатические переходы преимущественно происходят вблизи положения равновесия иона, т.е.  $\hbar\omega \approx \Delta U_{fi}(R_e)$ . Данное условие справедливо при условии, что большинство ионов локализовано вблизи точки  $R = R_e$  ( $R_e$  – положение равновесия кривой потенциальной энергии основного электронного терма  $I(1/2)_u$ , см. рис. 1), заведомо выполненном при невысоких  $T$ . Вследствие различия в поведении

термов  $I(1/2)_g$  и  $II(1/2)_g$  максимум на рис. 2(а) оказывается смещенным в сторону меньших длин волн.

При увеличении  $T$  оказываются возможными переходы с  $\hbar\omega \gtrsim \Delta U_{fi}(R_e)$  и  $\hbar\omega \lesssim \Delta U_{fi}(R_e)$ , и профиль сечений размывается. При этом для переходов  $I(1/2)_u \rightarrow I(1/2)_g$  происходит резкое смещение положения максимума в красную область. Напротив, для переходов  $I(1/2)_u \rightarrow II(1/2)_g$  максимум сдвигается плавно, но происходит сильное размытие профиля кривой  $\sigma_T^{\text{pd}}(\omega)$ , вследствие чего процесс (2) становится эффективным в широкой области энергий фотона.

На рис. 2(а) также представлены экспериментальные данные из работы [22], полученные при  $T = 300$  К. Как видно из рис. 2, результаты теории при этом хорошо согласуются с экспериментом. Некоторое различие в положении максимума, вероятно, связано с недостаточно высокой точностью расчетов параметров электронных термов, в частности, величины основного колебательного кванта.

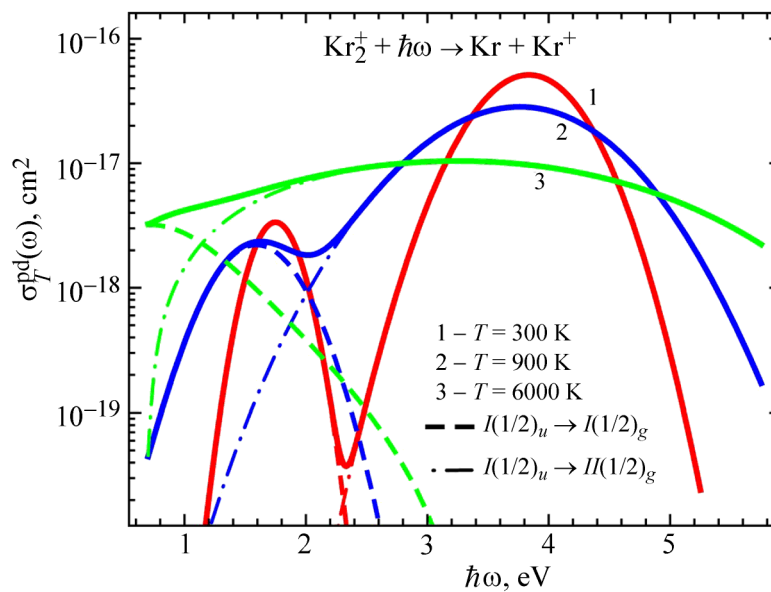


Рис. 3: Полные сечения фотодиссоциации ионов  $\text{Kr}_2^+$  при температурах  $T = 300, 900$  и  $6000$  К.

Полные сечения фотодиссоциации ионов  $\text{Kr}_2^+$  приведены на рис. 3 для  $T = 300, 900$  и  $6000$  К. Полученные результаты указывают на то, что увеличение газовой температуры приводит к кардинальному изменению как величин сечений, так и характерного вида их профиля. Так, при комнатных температурах в сечениях наблюдаются два резких пика, положение которых определяется структурой электронных термов системы. При  $T =$

900 К происходит эффективное перекрытие пиков, приводящее к возникновению небольшого плато в диапазоне энергий 1.5–2.5 eV. При высоких температурах в сечениях отсутствуют особенности в изучаемом диапазоне частот фотона.

*Выводы.* Выполнено теоретическое исследование процесса фотодиссоциации в криптоновой плазме при условиях, характерных для послесвечений разрядов. Установлено резкое количественное и качественное изменение поведений сечений указанного процесса при увеличении газовой температуры. Получено хорошее согласие теории с существующими экспериментальными данными. Результаты работы важны для моделирования и оптимизации работы источников излучения УФ- и ВУФ-диапазонов.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (грант № 19-79-30086).

#### Л И Т Е Р А Т У Р А

- [1] Г. Н. Герасимов, УФН **174**(2), 155 (2004). DOI: 10.3367/UFNr.0174.200402d.0155.
- [2] A. Morozov, T. Heindl, R. Krücken, et al., J. Appl. Phys. **103**(10), 103301 (2008). DOI: 10.1063/1.2931000.
- [3] M. I. Lomaev, E. A. Sosnin, V. F. Tarasenko, Prog. Quantum. Electron. **36**(1), 51 (2012). DOI: 10.1016/j.pquantelec.2012.03.003.
- [4] К. С. Гочелашвили, А. В. Демьянов, О. Н. Евдокимова и др., Краткие сообщения по физике ФИАН **40**(6), 3 (2013). DOI: 10.3103/S1068335613060018.
- [5] Л. М. Биберман, В. С. Воробьев, И. Т. Якубов, *Кинетика неравновесной низкотемпературной плазмы* (М., Наука, 1982), 378 с.
- [6] V. Alvin Shubert, M. Rednic, S. T. Pratt, J. Chem. Phys. **132**(12), 124108 (2010). DOI: 10.1063/1.3356040.
- [7] O. Zehnder, F. Merkt, J. Chem. Phys. **128**(1), 014306 (2008). DOI: 10.1063/1.2815801.
- [8] C. Zhang, T. Feng, N. Raabe, H. Rottke, Phys. Rev. A **97**(2), 023417 (2018). DOI: 10.1103/PhysRevA.97.023417.
- [9] Y.-N. Liang, F. Wang, J. Guo, J. Chem. Phys. **138**(9), 094319 (2013). DOI: 10.1063/1.4792435.
- [10] V. S. Lebedev, L. P. Presnyakov, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **35**(21), 4347 (2002). DOI: 10.1088/0953-4075/35/21/303.
- [11] O. Zehnder, R. Mastalerz, M. Reiher, et al., J. Chem. Phys. **128**(23), 234306 (2008). DOI: 10.1063/1.2937133.

- [12] В. С. Лебедев, Л. П. Пресняков, И. И. Собельман, Успехи физических наук **173**(5), 491 (2003). DOI: 10.3367/UFNr.0173.200305b.0491.
- [13] D. R. Bates, Mon. Not. R. Astron. Soc. **111**(3), 303 (1951). DOI 10.1093/mnras/111.3.303.
- [14] D. R. Bates, Mon. Not. R. Astron. Soc. **112**(1), 40 (1952). DOI 10.1093/mnras/112.1.40.
- [15] F. Von Busch and G. H. Dunn, Phys. Rev. A **5**(4), 1726 (1972). DOI: 10.1103/PhysRevA.5.1726.
- [16] A. A. Mihajlov, M. S. Dimitrijević, and Lj. M. Ignatović, Astron. & Astrophys. **276**, 187 (1993).
- [17] P. C. Stancil, Astrophys. J. **430**(1), 360 (1994). DOI: 10.1086/174411.
- [18] В. С. Лебедев, Л. П. Пресняков, И. И. Собельман, Письма в ЖЭТФ **72**(4), 256 (2000). DOI: 10.1134/1.1320107.
- [19] В. С. Лебедев, Л. П. Пресняков, И. И. Собельман, Астрономический журнал **77**(5), 390 (2000). DOI: 10.1134/1.163856.
- [20] Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Квантовая механика. Нерелятивистская теория* (М., Физматлит, 2004), 800 с.
- [21] V. S. Lebedev, *Collision Processes Involving Highly Excited Atoms and Neutral Particles* (Cambridge, Cambridge Scientific Publishers, 2004), 308 p.
- [22] R. Mastalerz, O. Zehnder, M. Reiher, F. Merkt, J. Chem. Theory Comput. **8**(10), 3671 (2012). DOI: 10.1021/ct300078m.
- [23] L. C. Lee and G. P. Smith, Phys. Rev. A **19**(6), 2329 (1979). DOI: 10.1103/PhysRevA.19.2329.

Поступила в редакцию 19 августа 2020 г.

После доработки 24 августа 2020 г.

Принята к публикации 25 августа 2020 г.