

ЭЛЕКТРОННОЕ ВОЗБУЖДЕНИЕ МАТРИЦЫ ПРИ ДРЕЙФЕ ИЗБЫТОЧНЫХ ЭЛЕКТРОНОВ ЧЕРЕЗ ТВЕРДЫЙ КСЕНОН

*Е. Б. Гордон**

*Институт проблем химической физики Российской академии наук
142432, Черноголовка, Московская обл., Россия*

*Дж. Фроссати**, А. Усенко*

*Лаборатория Камерлинг-Оннеса, Лейденский университет
2300 RA Лейден, Нидерланды*

Поступила в редакцию 31 октября 2002 г.

Экспериментально показано, что квантовый выход экситонной люминесценции ($\lambda = 172$ нм), возбуждаемой избыточными электронами, дрейфующими через твердый ксенон при 77 К в полях 10 кВ/см, составляет 20 ± 5 на один электрон, а люминесценция имеет место в течение всего дрейфа. Реализован постоянный объемный разряд через твердый ксенон (ток до 20 А/см²) и наблюдается интенсивная видимая люминесценция, обязанная возбуждению примесей электронным ударом. Обсуждены перспективы использования твердых тяжелых инертных газов в качестве матриц для исследования процессов в низкотемпературной плазме и для создания эффективных преобразователей электрической энергии в области вакуумного ультрафиолета.

PACS: 34.80.Gs, 33.20.Ni, 72.20.Jv

1. ВВЕДЕНИЕ

Способность жидких и твердых тяжелых инертных газов (ТИГ) — ксенона, криптона и аргона — служить проводниками избыточных электронов хорошо известна: их подвижности в ТИГ даже выше чем в металлах, а длины свободного пробега достигают нескольких метров. С другой стороны, известно также, что облучение ТИГ быстрыми (более 10 эВ) электронами с высокой вероятностью приводит к образованию электронных возбуждений матрицы (экситонов) и, соответственно, к излучению света в области вакуумного ультрафиолета (ВУФ). Именно эти свойства делают жидкие ТИГ перспективным рабочим телом сцинтилляционных детекторов частиц высокой энергии [1].

В 1994 г. одним из авторов настоящей работы (Е. Б. Г.) с соавторами была предложена модель дрейфа избыточных электронов через конденсированные ТИГ в умеренно сильных электрических по-

лях, объясняющая основные характеристики дрейфа возбуждением экситонов дрейфующими электронами [2, 3]. Ввиду малости энергетических потерь электронов при их движении по атомному кристаллу (или жидкости), уже давно полагалось, что достигаемая электронами энергия существенно превышает термическую, однако считалось, что она не может быть больше той, при которой происходит восстановление величины упругого рассеяния электронов в соответствующем газе после рамзауэровского минимума, т. е. 0.3–0.7 эВ [4]. Утверждение о том, что в твердом теле электроны могут разогнаться до необходимых для возбуждения матрицы энергий 8–11 эВ, превышающих их средние энергии даже в газовых разрядах, выглядело достаточно смелым. Тем не менее первая попытка экспериментальной проверки предсказаний работ [2, 3], предпринятая группой Видера [5], показала, что при дрейфе эмитированных холодным катодом электронов через жидкий ксенон под напряжением 70 В действительно наблюдается достаточно интенсивное свечение в области 172 нм, совпадающее по спектру с излучением двухцентровых экситонов Хе*. К сожалению,

*E-mail: gordon@binep.ac.ru

**G. Frossati, Kamerling-Onnes Lab. Leiden University, P. O. Box 9504, 2300 RA Leiden, the Netherlands

из данных работы [5], так же как и из более подробного описания этих экспериментов [6], невозможно даже оценить квантовый выход излучения, т. е. количество ВУФ-квантов, приходящееся на один дрейфующий электрон. Поэтому нельзя было с определенностью сказать, является ли наблюдаемая электролюминесценция уникальным событием или же, как это предполагалось в [2, 3], дрейфующий электрон много раз достигает необходимой для возбуждения энергии, каждый раз теряя ее в этом процессе. Естественно, что только в последнем случае можно говорить о практическом использовании данного эффекта, скажем, для создания эффективных преобразователей энергии электростатического поля в ВУФ-свет.

Следует особо подчеркнуть, что, как показал проведенный недавно анализ [7], обсуждаемый эффект должен быть присущим лишь конденсированному состоянию: никто никогда не наблюдал никакого свечения при дрейфе электронов в газообразном ксеноне при давлениях больше 10 бар. Более того, подстановка в формулы газовой модели [8] плотностей, характерных для твердого тела и жидкости, приводит к значениям электрического поля, при которых должна наблюдаться «эксимерная» люминесценция и которые находятся в экспериментально недостижимом диапазоне. Переход в конденсированную фазу принципиально меняет характер движения электрона через среду. На это ясно указывает интересный эффект, впервые обнаруженный в [4], — подвижность избыточного электрона (измеренная по времени задержки импульса тока в малых полях) в газовом ксеноне убывает, как и полагается, обратно пропорционально его давлению, но в критической точке она скачком возрастает на четыре (!) порядка, оставаясь высокой и в жидкости, и в твердом теле. Это означает, что в них эффективное сечение упругого рассеяния такое же, как в газе при 0.1 бар. Качественно это можно рассматривать как геометрическую компенсацию отклонения при взаимодействии электрона сразу с многими атомами (его длина волны де-Бройля больше межатомного расстояния). Но такой компенсации не должно быть при насыщающемся взаимодействии «химического» типа — электронном возбуждении, образовании ионов, химических реакциях, когда электрон взаимодействует с одним центром. Поэтому сечения таких процессов должны оставаться близкими к газофазным (особый интерес представляет вопрос о том, как трансформируется такой размерный эффект как эффект Рамзауэра при переходе к конденсированной фазе). В частности это касается упругого рассеяния элек-

трона на состоянии метастабильного отрицательного возбужденного иона инертного газа, которое лежит для всех ТИГ на 0.4 эВ ниже уровня атомного (одноцентрового) возбуждения, хотя, однако, и выше уровня двухцентрового (молекулярного) экситона. По этой причине рассеяние на структуре отрицательного иона, наблюдаемое, но не затрагивающее основные характеристики дрейфа в газе, в конденсированном состоянии может оказаться важным механизмом упругих потерь, затрудняющих набор электроном энергии, достаточной для возбуждения одноцентрового экситона, обычно являющегося предшественником двухцентрового [9]. В результате в течение продолжительного времени электрон движется в направлении поля, имея постоянную энергию, и, значит, квантовый выход электролюминесценции может быть значительно ниже своего предельного значения, определяемого как отношение приложенного напряжения U к энергии W_a возбуждения одноцентрового экситона. Как показывает анализ, проведенный в [7], это и является причиной постоянства дрейфовой скорости электрона в больших электрических полях.

Трудность проведения последовательного анализа специфики дрейфа электронов в конденсированных средах стимулировала эксперименты, направленные на обнаружение предсказанного эффекта и определение величины квантового выхода электролюминесценции.

2. МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

Настоящая работа посвящена измерению квантового выхода η ВУФ-излучения при дрейфе избыточных электронов через твердый ксенон. Его надежное определение представляет собой непростую задачу, поскольку для этого обычно следует найти число дрейфующих электронов и восстановить полное число излучаемых фотонов с учетом геометрии наблюдения, эффективностей оптического тракта и фотодетектора и т. д. Дополнительным затрудняющим обстоятельством является тот факт, что измерения следует проводить при весьма низких электронных токах. Это связано с проблематичностью очистки ксенона до такой степени, чтобы концентрация примесного кислорода в нем была меньше $0.3ppb$, что отвечает плотности 10^{13} см^{-3} в твердом ксеноне. В то же время уже концентрации отрицательных ионов (которые возникают при захвате электронов неподвижными в твердом ксеноне молекулами O_2), равной 10^{11} см^{-3} , достаточно, чтобы за счет пространственного заряда полностью скомпен-

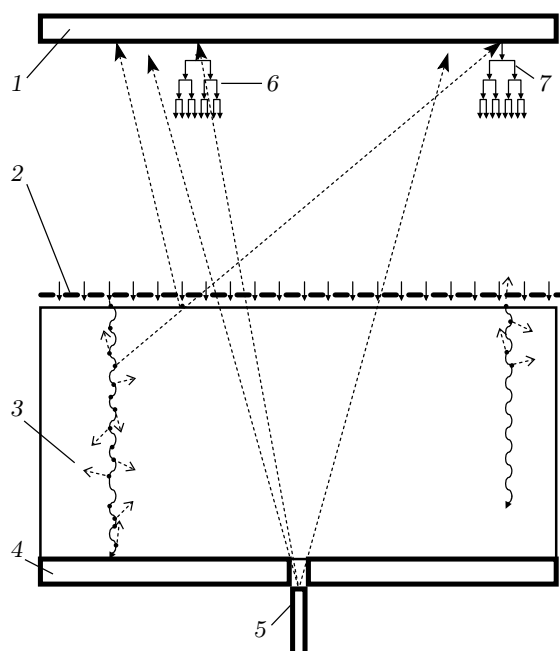


Рис. 1. Схема электролитической ячейки: 1 — фотокатод; 2 — сетка; 3 — кристалл ксенона; 4 — анод; 5 — световод; 6 и 7 — лавины, соответственно, первичных и вторичных электронов. Сплошные стрелки соответствуют электронам, пунктирные — фотонам

сировать электрическое поле 1 кВ/см. В результате возникает ограничение сверху на величину полного заряда, протекающего через образец, и чем меньше ток, тем дольше можно работать с твердым образцом без его перекристаллизации.

Для решения поставленной задачи был предложен метод [10], суть которого ясна из рис. 1. Использовалась трехэлектродная ячейка, цинковый катод которой обладал значительным выходом фотоэлектронной эмиссии в ультрафиолетовой части спектра. Кристалл ксенона выращивался внизу ячейки между анодом и сеткой. Верхняя часть ячейки заполнялась либо аргоном до давления в несколько миллибар (если эксперименты проводились при температуре 77 К), либо насыщенными парами ксенона при таком же давлении (в этом случае температура поддерживалась равной 125 К). Металлическая сетка была заземлена, а на электроды подавались напряжения — отрицательное на катод и положительное на анод — от двух независимых источников питания. Через отверстие в аноде, изготовленном из нержавеющей стали, катод облучался импульсами излучения четвертой гармоники импульсно-периодического Nd : YAG лазера (длина волны

266 нм, длительность импульса 1 нс, частота следования импульсов 10^4 Гц), подаваемого через кварцевый световод. Количество эмитируемых катодом фотоэлектронов составляло 10^4 – 10^5 за импульс. Образующиеся при дрейфе электронов через твердый ксенон кванты ВУФ-света, попадая на фотокатод, должны, в свою очередь, образовывать новые фотоэлектроны.

Описанная конструкция привлекательна сразу с нескольких точек зрения. Во-первых, наличие промежутка между кристаллом и катодом, заполненного газом низкого давления, позволяет подавить известный эффект обратной диффузии, на порядки снижающий вероятность выхода электрона из катода в конденсированную среду при их прямом контакте, даже если (как это имеет место для ТИГ) свободная энергия электрона в веществе ниже, чем в вакууме [11]. Во-вторых, ускоряясь под действием электрического поля, электроны многократно ионизируют находящийся в промежутке катод–сетка инертный газ, приводя к образованию электронной лавины. Но самое главное, что этот своеобразный, «встроенный» в измерительную ячейку фотоэлектронный умножитель увеличивает и число вторичных, образующихся под действием экситонного излучения, электронов. Благодаря этому, положительная обратная связь (при дрейфе в твердом ксеноне электроны вызывают ВУФ-излучение, порождающее новые электроны, которые, размножаясь в газе, попадают в твердый ксенон и т. д.) становится столь мощной, что позволяет преодолеть естественные потери (ограниченный телесный угол светосбора, неполная прозрачность сетки и др.) вплоть до достижения порога возникновения самоподдерживающегося разряда.

3. ТЕХНИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

В вакуумной системе, схема которой представлена на рис. 2, использовались исключительно материалы и устройства, предназначенные для работы в условиях сверхвысокого вакуума. Все трубопроводы были выполнены из нержавеющей стали, для соединений использовались фланцы и медные прокладки фирмы Varian. При изготовлении измерительной ячейки и системы очистки ксенона никакие пластики, клеи и (из-за невозможности полного удаления флюса) пайки не применялись. Вся вакуумная система могла прогреваться до 200 °С для обезгаживания. Откачка осуществлялась высоковакуумным турбомолекулярным насосом TPU-170, поддержива-

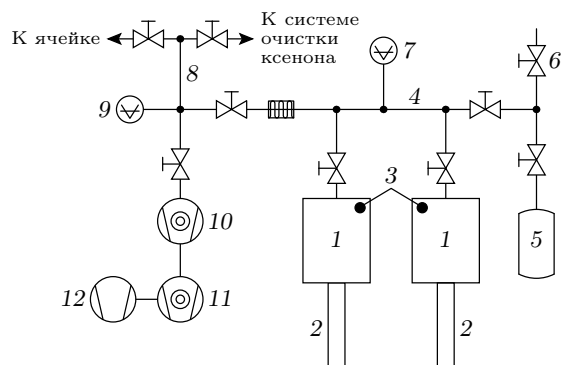


Рис. 2. Вакуумная система: 1 — бачки для хранения ксенона с «пальцами» 2 и неиспаряемыми геттерами 3; 4 — гребенка; 5 — бачок для хранения аргона; 6 — высоковакуумный вентиль; 7 — вакуумметр ИКР-251; 8 — вакуумпровод; 9 — манометр СМР-261; 10 — высоковакуумный турбомолекулярный насос; 11 — турбомолекулярный насос; 12 — мембранный насос

емым на выходе тандемом турбомолекулярного и мембранного насосов ТРН-065 (все насосы фирмы Pfeiffer). Бачки для хранения ксенона имели снизу специальные «пальцы», в которые при необходимости ксенон сморазживался жидким азотом, и были снабжены коммерческими неиспаряемыми геттерами для поддержания чистоты газа.

Система очистки ксенона, представленная на рис. 3, составляла одно целое с вакуумной системой. За основу был взят простой и надежный метод искрового разряда, впервые предложенный Ободовским с сотр. [12]. Его принцип близок к принципу работы геттерно-ионного насоса, но работающего в жидкости. Катодом камеры очистки являлось заточенное до остроты лезвия титановое кольцо, а анодом — цилиндрический металлический стержень, межэлектродное расстояние составляло 0.2 мм. Перед началом процедуры вся камера погружалась в сосуд с этиловым спиртом, охлаждаемым постоянно добавляемым к нему жидким азотом до кашеобразной консистенции. Ксенон конденсировался в камеру в таком количестве, чтобы уровень жидкости был на 1 см выше плоскости катода. При достаточно высоком напряжении между катодом и анодом внутри жидкого ксенона возникали одна или две искры, перемещавшиеся по кругу по мере распыления материала катода. Ток искры ограничивался мощным высоковольтным резистором сопротивлением 1 МОм. Распыляющийся титан, осаждаясь на аноде, поглощал примеси из жидкого ксенона, а возникаю-

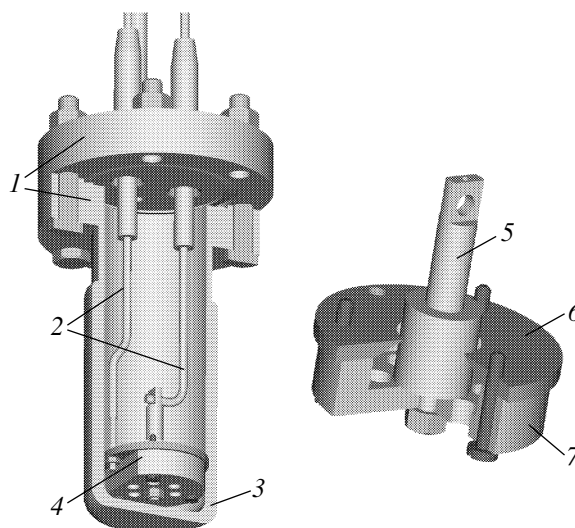


Рис. 3. Камера очистки ксенона электроискровым методом: 1 — вакуумные фланцы; 2 — медные токопроводы; 3 — стеклянная ячейка (пирекс); 4 — электродный узел (отдельно показан справа); 5 — анод; 6 — титановое кольцо; 7 — электроизолятор из Макара

щая при пробое кавитация вызывала интенсивное перемешивание жидкости, поставляющее свежие порции в зону очистки. В соответствии с рекомендациями [12], о степени очистки судили по звуку, цвету и продолжительности искрового пробоя. Если в ксеноне, первоначально очищенном многократным перемораживанием с откачкой при $T = 77$ К остающихся паров, искра была яркой, краткой и сопровождалась громким хлопком, то после нескольких часов электроискровой очистки она становилась бледной, продолжительной и сопровождалась тихим шипением. Напряжение при этом приходилось поднимать до 10 кВ. Согласно [12], степень очистки таким методом лучше чем 10^{-9} ; об ее эффективности можно было судить по следующему наблюдению: дополнительная конденсация небольшого количества очищенного перемораживанием ксенона из гребенки вакуумной системы сразу приводила к заметному изменению характеристик искры. Очищенный ксенон хранился в бачке с предварительно активированным геттером.

Конструкция электролитической измерительной ячейки ясна из рис. 4. Ее основная часть представляла собой стеклянный цилиндр, соединенный через коваровые переходы с двумя стальными фланцами. Нижний фланец был электрически соединен с укрепленным на нем стальным анодом, имеющим

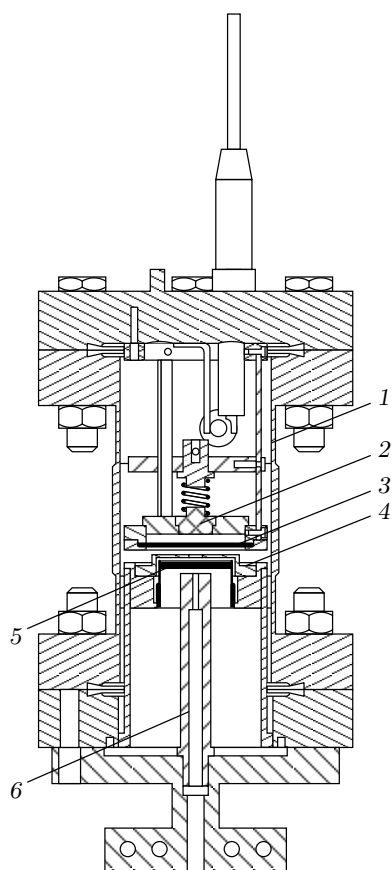


Рис. 4. Электролитическая ячейка: 1 — тело ячейки; 2 — цинковый катод; 3 — сетка; 4 — анод; 5 — сапфировое окно; 6 — рубашка световода

центральное отверстие диаметром 2 мм, закрытое снаружи сапфировым окном. Полированный конец кварцевого световода, служащего для облучения катода импульсами лазерного излучения, был укреплен в непосредственной близости от окна. Конструкция анодного узла определялась необходимостью как максимального уменьшения паразитного объема ниже поверхности анода, так и компенсации механических напряжений, возникающих при охлаждении ячейки. К нижнему концу анодного узла присоединялся массивный медный стержень диаметром 14 мм, служащий хладопроводом от жидкого азота к ячейке. На верхнем фланце, снабженном двумя высоковольтными вводами, укреплялся цинковый катод рабочим диаметром 10 мм и сетка. Расстояние между катодом и сеткой составляло 2 мм, их электрическая изоляция осуществлялась шайбой из керамики Макор; использовалось несколько типов сеток — медных и из нержавеющей стали — с геометрической прозрачностью от 40 до 60%. Изменени-

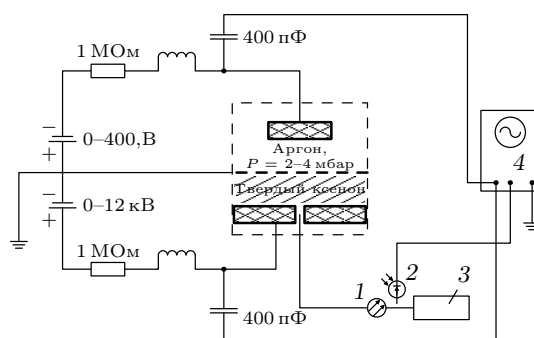


Рис. 5. Электрическая схема: 1 — устройство ввода излучения в световод; 2 — фотодиод системы синхронизации; 3 — Nd : YAG-лазер ($\lambda = 266$ нм); 4 — осциллограф

ем длины держателей катода расстояние между сеткой и анодом могло меняться от 1 до 2 мм, соответственно менялась и толщина образца. Ячейка была снабжена двумя электрическими нагревателями, намотанными на верхний и нижний фланцы, а также платиновым термометром.

Ячейка помещалась в прозрачный стеклянный дьюар, в который заливался жидкий азот так, чтобы медный стержень был погружен в жидкость. Подачей напряжения на нижний нагреватель температура ячейки поднималась до $T = 165$ К, отвечающей сосуществованию жидкости и газа вблизи тройной точки ксенона. После этого медленно конденсировали ксенон из бачка в ячейку. Количество газа в бачке подбиралось таким образом, чтобы после завершения процедуры поверхность жидкого ксенона находилась на уровне сетки (после кристаллизации и дальнейшего охлаждения верхний край образца опускался заметно ниже). После этого ячейка отделялась вакуумным вентиляем от остальной части установки, и сбросом напряжения, подаваемого на нагреватель, производилось медленное отверждение образца и его дальнейшее охлаждение либо до температуры 125 К, когда давление насыщенных паров ксенона составляло 1.2 мбар, либо до 77 К. В последнем случае после достижения температуры 100 К жидкий азот доливался в дьюар до уровня верхнего фланца ячейки и в нее дополнительно напускался предварительно очищенный аргон до давления 1.2 мбар. Образец всегда оставался прозрачным в течение всей процедуры.

Электрическая схема измерений представлена на рис. 5. Индуцированный лазерным импульсом электронный ток в промежутках катод-сетка и сетка-анод детектировался путем измерения перемен-

ной составляющей напряжения на соответствующем источнике питания с помощью запоминающего осциллографа ($f = 500$ МГц, вход 50 Ом). Используемая схема позволяла избежать попадания высокого напряжения на вход осциллографа и при этом детектировать сигналы с временным разрешением не хуже 2 нс. Все сигналы синхронизовались лазерным импульсом, детектируемым фотодиодом.

4. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

Для выяснения работоспособности методики прежде всего было необходимо определить характеристики газового «фотоэлектронного умножителя» — его временное разрешение и достижимые величины коэффициента умножения числа электронов, ограниченные сверху возникновением самоподдерживающегося разряда между катодом и сеткой. В откаченной пустой ячейке сигнал от первичных, эмитированных лазерным импульсом из катода, электронов, измеренный в верхнем (катод–сетка) промежутке имел длительность 2 нс, близкую к длительности лазерного импульса, и насыщался при напряжении $U_{cg} \approx 100$ В. При напуске инертного газа в ячейку амплитуда электронного тока начинает экспоненциально зависеть от U_{cg} , причем характеристики токового сигнала нечувствительны как к изменению температуры в диапазоне $T = 77\text{--}300$ К, так и к наличию напряжения между сеткой и анодом. Типичные зависимости приведены на рис. 6а, б, при этом максимальные представленные там напряжения уже весьма близки к порогу зажигания разряда. Увеличение давления газа приводило к уширению токового импульса, поэтому использовались давления, при которых длительность импульса не превышала 10 нс. Для удобства сравнения характеристик лавинного размножения электронов в различных инертных газах зависимости амплитуды тока J от приложенного напряжения представлены на рис. 6в, г в виде

$$k \equiv \frac{J}{J_0} = \alpha^{U/I_0} = \exp\left(\frac{U}{I_0} \ln \alpha\right), \quad (1)$$

где k — коэффициент умножения, I_0 — потенциал ионизации соответствующего газа, а α — коэффициент размножения электрона при его неупругом столкновении с атомом ($1 < \alpha < 2$). Интересно, что коэффициент размножения практически одинаков для всех использованных инертных газов (He, Ar, Xe) и довольно высок (приблизительно половина всей приобретенной электроном от поля энергии расходуется на ионизацию).

В целом же характеристики «фотоумножителя» вполне удовлетворяют поставленной задаче: 1) коэффициент умножения воспроизводим и достаточно велик, $k = 300\text{--}1000$, чтобы в заметной мере компенсировать сравнительно низкую (определяемую геометрией ячейки и прозрачностью сетки) вероятностью γ попадания ВУФ-кванта из кристалла ксенона на катод и низкий выход фотоэлектронной эмиссии из цинка, $\varepsilon(\lambda = 172 \text{ нм}) \approx 10^{-3}$; 2) характеристическое время отклика фотоумножителя на короткий сигнал, равное 10 нс, меньше других характеристических времен в системе.

Специальными экспериментами было подтверждено также, что присутствие твердого ксенона в нижнем (сетка–анод) промежутке никак не влияло на токовые характеристики фотоумножителя при условии, что на этот промежуток подавалось запирающее для электронов напряжение $U_{ga} < 0$.

Пороговым условием для возникновения в электростатической ячейке с фотокатодом самоподдерживающегося разряда является соотношение

$$\varepsilon k \eta \gamma = 1, \quad (2)$$

означающее, что за счет положительной обратной связи через ВУФ-излучение каждый первичный электрон приводит к образованию еще одного электрона. Поскольку квантового выхода электролюминесценции $\eta = 10$ в наших условиях уже вполне достаточно для достижения порога самоподдерживающегося разряда, в принципе, можно было бы определить зависимость порогового значения напряжения от приложенного к кристаллу напряжения U_{ga} и далее, на основании соотношения (2), квантовый выход η и его зависимость от U_{ga} .

Однако сделать это оказалось совсем непросто, и надежность такого определения не могла быть достаточно высокой. Прежде всего оказалось невозможным работать в условиях, когда сетка заморожена в твердый ксенон. Ввиду дрейфового характера движения электронов в твердом теле «прозрачность» сетки для них много меньше геометрической: поскольку толщина сетки была сравнима с поперечным размером ее ячеек, даже при попадании в область «прозрачности» электрон с очень большой вероятностью оказывается на стенке «канала». Увеличить же размер ячейки до более чем 0.1 мм было невозможным из-за «провисания» поля при полной ширине зазора 1–2 мм. Поэтому мы всегда оставляли зазор 0.1–0.2 мм между нижним краем сетки и верхней поверхностью образца. Это, в свою очередь, приводило к тому, что при изменении напряжения U_{ga} на нижнем промежутке одновременно менялся

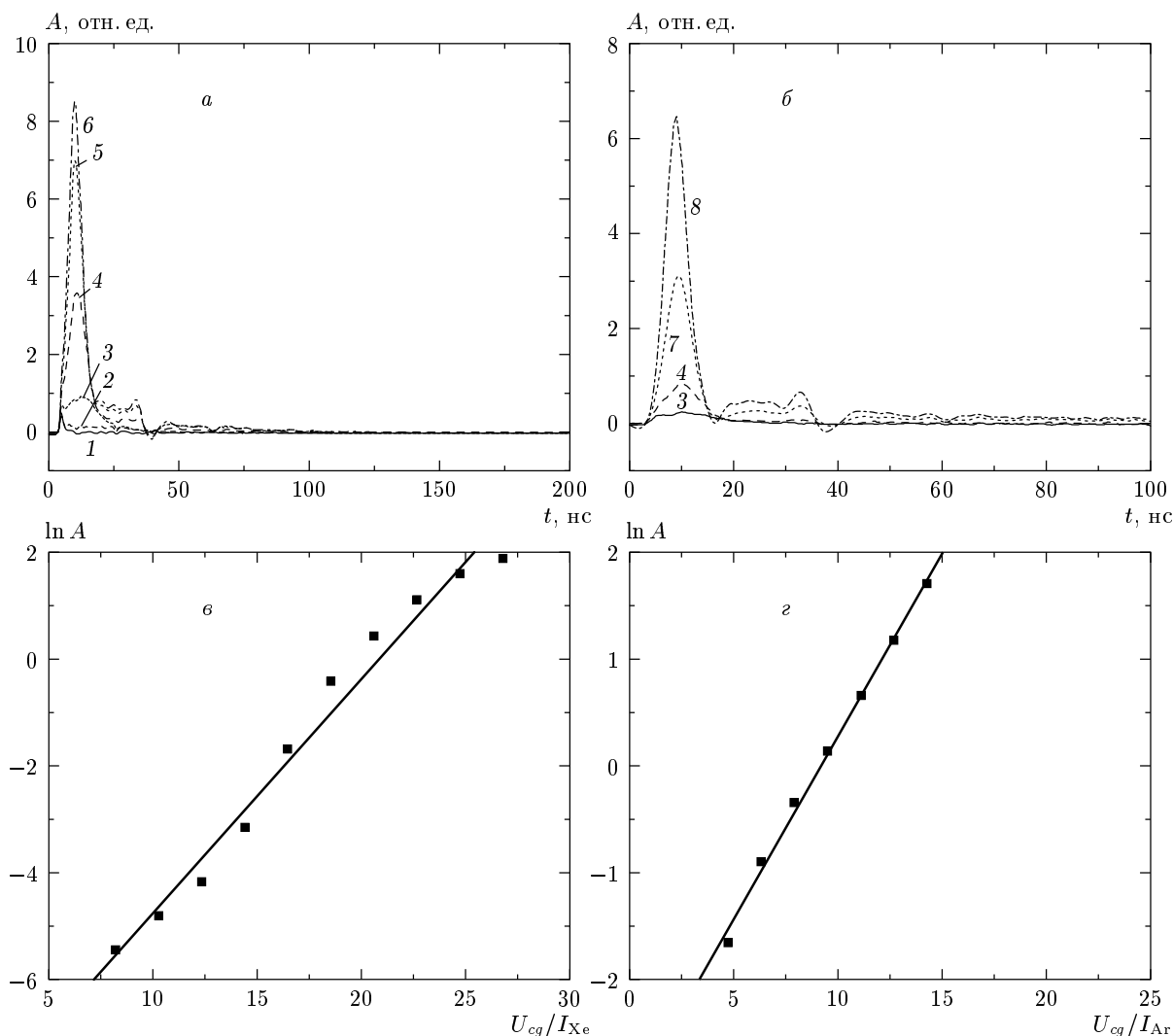


Рис. 6. Импульсы электронного тока в промежутке катод–сетка при давлении газа 1.2 мбар и различных напряжениях $U_{cg} = 0$ (1), 50 (2), 100 (3), 150 (4), 165 (5), 175 (6), 200 (7), 245 В (8) для ксенона (а) и аргона (б), а также зависимости логарифма пиковой интенсивности импульсов от безразмерного напряжения $U_{cg}/I_{Xe, Ar}$ ($I_{Xe, Ar}$ — потенциал ионизации соответствующего атома): ϵ — Xe, $P = 2.4$ мбар, $T = 300$ К, $\alpha = 1.55$; z — Ar, $P = 3.6$ мбар, $T = 77$ К, $\alpha = 1.40$. Наивысшие напряжения на 5–10 В ниже порогового для зажигания разряда

коэффициент умножения электронов, k . Это изменение было тем более значительным, что из-за высокой диэлектрической постоянной твердого ксенона напряженность поля в области, занимаемой газом, почти в два раза выше, чем в образце. Более того, при приготовлении образца и его охлаждении ксенон частично осаждался на сетку, меняя ее прозрачность для света и особенно для электронов. Это, наряду с «отравлением» катода примесными газами (несмотря на очень высокую относительную чистоту ксенона их абсолютное количество было достаточно велико), приводило к значительным вариациям в

величинах токовых сигналов от эксперимента к эксперименту.

Поэтому квантовый выход ВУФ-излучения определялся следующим образом. В отсутствие положительной обратной связи ток в промежутке между катодом и сеткой должен был представлять собой короткий импульс, подобный приведенному на рис. 6а, б — ток, связанный с дрейфовым движением электронов через твердый ксенон, не может давать никакого вклада, поскольку он протекает по другой электрической цепи. В ячейке с твердым ксеноном положительная обратная связь существует в любом

случае. Дело в том, что, как показали наши эксперименты с электронной лавиной в газе, энергия электронов там достаточна для эффективной ионизации газа и заведомо достаточна, особенно при использовании аргона, для возбуждения экситонов в твердом ксеноне. Бомбардировка поверхности твердого ксенона приводит, как известно, к эффективной экситонной люминесценции, причем радиационное время высвечивания экситонов в твердом ксеноне составляет $\tau_R = 30$ нс [9]. Это означает, что на заднем фронте импульса электронного тока в верхнем промежутке, отвечающего электронной лавине в газе, должен наблюдаться более медленный сигнал, экспоненциально спадающий с характеристическим временем 30 нс и отвечающий вторичным электронам, эмитированным из катода под действием излучения поверхностных экситонов. При этом нет никаких оснований считать, что выход этой электролюминесценции заметно отличается от единицы [9]. Если же, кроме того, электроны образуют экситоны в течение всего их дрейфа через твердый ксенон, то за экспоненциально спадающим сигналом должен следовать гораздо более длинный хвост от вторичных электронов, возникающих под действием излучения этих экситонов. Вдали от порога возникновения разряда, когда можно пренебречь вкладом от третичных, четвертичных и т. д. электронов, этот сигнал должен иметь вид плато, простирающегося до времени прихода на анод дрейфующих через образец первичных электронов. Естественно, что площади токовых сигналов, порожденных объемными и поверхностными экситонами, пропорциональны количеству соответствующих вторичных электронов, так что с учетом сказанного выше их отношение должно быть равно квантовому выходу ВУФ-фотонов на один дрейфующий электрон. При этом практически все эффекты, ухудшающие воспроизводимость результатов, — отравление катода, блокада сетки оседающим на ней ксеноном, влияние неконтролируемого зазора между сеткой и поверхностью кристалла — не влияют на величину отношения, поскольку одинаково действуют на обе стадии сигнала.

Как видно из рис. 7, экспериментальные результаты хорошо согласуются с приведенными представлениями. При достаточно низких напряжениях токовый сигнал в верхнем промежутке помимо убывающего с характеристическим временем около 30 нс хвоста содержит плато, длительность которого не только пропорциональна толщине d образца твердого ксенона, но численно совпадает с временем дрейфа избыточного электрона через ксенон, $\tau = d/v_d$, где v_d — дрейфовая скорость электрона (как хорошо

известно [13], в используемом диапазоне напряженности E электрического поля скорость v_d не зависит от E). В принципе, величина v_d несколько зависит от степени очистки ксенона и температуры, при которой проводятся измерения; с учетом этого величина $v_d = 1.3 \cdot 10^5$ см/с, следующая из наших экспериментальных данных, представляется хорошо согласующейся с литературными данными, полученными для ксенона высокой чистоты [14].

Однако наиболее убедительным доказательством справедливости приведенной выше трактовки является наблюдение закономерностей перехода к самостоятельному разряду. При импульсном рождении первичных электронов по мере приближения системы к порогу токовый импульс в общем случае приобретает так называемый регенерационный характер, связанный с суммарным вкладом вторичных, третичных и всех последующих поколений электронов в электронный ток. Порог зажигания разряда соответствует условиям, при которых площадь регенерационного пика, т. е. количество порожденных положительной обратной связью электронов, становится равной площади исходного импульса тока, равной числу первичных электронов. Легко видеть, что в силу своей интегральной природы регенерационный сигнал максимален на временах, отвечающих окончанию действия положительной обратной связи, ответственной за развитие разряда (для обратной связи, имеющей вид прямоугольника, это утверждение является математически строгим).

В ячейке с фоточувствительным катодом в любом случае положительная обратная связь, обеспечивающая переход к разряду, осуществляется фотоэлектронной эмиссией за счет облучения катода индуцированными электронами ультрафиолетовым излучением [8]. Но если в газе низкого давления ответственным за фотоэмиссию электронов обычно является излучение на оптически разрешенных переходах атомов и молекул, возбужденных электронным ударом ($\tau_R \approx 10$ нс), то в присутствии кристалла ксенона оптическое излучение индуцируется электронами в течение всего времени их дрейфа через твердый ксенон. И действительно, как видно из рис. 6, в газовой ячейке приближение к порогу возникновения разряда приводит лишь к уширению импульса тока ($\Delta\tau \approx 10$ нс). В противоположность этому регенерация в ячейке с твердым ксеноном (см. рис. 7) развивается на два порядка медленнее и максимум пика жестко привязан к моменту времени, когда дрейфующие через ксенон первичные электроны покида-

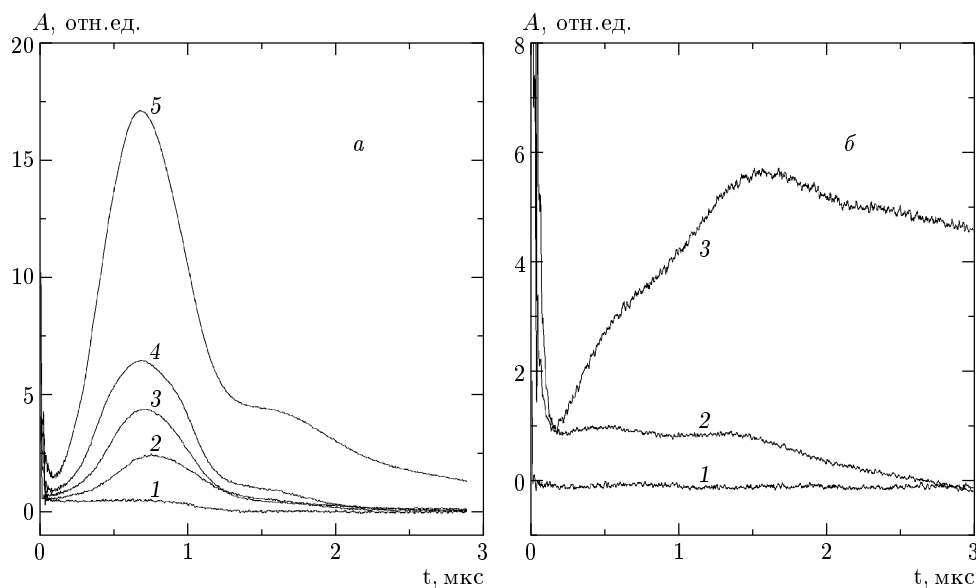


Рис. 7. Электронный ток в газовом промежутке (катод–сетка) при различных напряжениях, приложенных к кристаллу ксенона: *a* — кристалл толщиной 1 мм, $T = 125$ К, газ — ксенон; $U_{cg} = 380$ В; $U_{ga} = 270$ (1), 310 (2), 330 (3), 350 (4), 370 В (5); *b* — кристалл толщиной 2 мм, $T = 77$ К, газ — аргон: 1 — $U_{cg} = 280$ В, $U_{ga} = 0$ В; 2 — $U_{cg} = 280$ В, $U_{ga} = 1000$ В; 3 — $U_{cg} = 400$ В, $U_{ga} = 700$ В

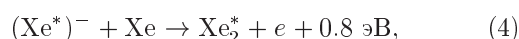
ют ячейку, уходя в анод¹⁾. В частности, двукратное увеличение толщины твердого образца приводит к двукратному увеличению времени достижения максимума, что служит лишним подтверждением того, что задержка обратной связи не связана с электронной эмиссией под влиянием бомбардировки катода медленно летящими тяжелыми ионами из газа (последняя, в принципе, может быть ответственна за развитие разряда [8]).

Таким образом, можно с уверенностью утверждать, что при дрейфе электронов в электрическом поле через твердый ксенон происходит многократное возбуждение ими экситонов и именно излучение этих экситонов является ответственным за положительную обратную связь, вызывающую переход к самостоятельному разряду. Отношение площадей медленной (отвечающей возбуждению объема кристалла) и быстрой (связанной с возбуждением его поверхности) компонент тока вторичных электронов для данных рис. 7а ($T = 77$ К, $d = 2$ мм, $U_{ga} = 1000$ В) дает величину квантового выхода электролюминесценции $\eta = 20 \pm 5$. Эта величина, естественно, зависит от приложенного к кристаллу

напряжения, поэтому более универсальной является величина эффективности преобразования энергии электрического поля в энергию ВУФ-излучения, определяемая как

$$\kappa = \eta h\nu / eU, \tag{3}$$

где $h\nu$ — энергия ВУФ-кванта, U — приложенное напряжение. Для приведенных данных $\kappa = 18\%$. Таким образом, несмотря на высокие абсолютные значения квантового выхода, большая часть приобретаемой дрейфующим электроном от электрического поля энергии тратится на возбуждение решетки кристалла. Этот вывод находится в согласии с наблюдаемым во всех экспериментальных работах постоянством дрейфовой скорости электрона в высоких электрических полях E : согласно развитой в [7] модели независимость v_d от E может иметь место лишь в случае, если электрон большую часть времени имеет линейную скорость v_T , отвечающую энергии порога образования метастабильного иона $(Xe^*)^-$, $E_{th} = 8.0$ эВ, двигаясь при этом в направлении поля со скоростью v_d^∞ . Образование двухцентрового экситона He_2^* может произойти либо в результате процесса



имеющего невысокую вероятность из-за большой

¹⁾ Это является удобным (ввиду большой величины сигнала и отсутствия необходимости обосновывать пренебрежение регенерационными эффектами) методом определения скорости дрейфа электрона.

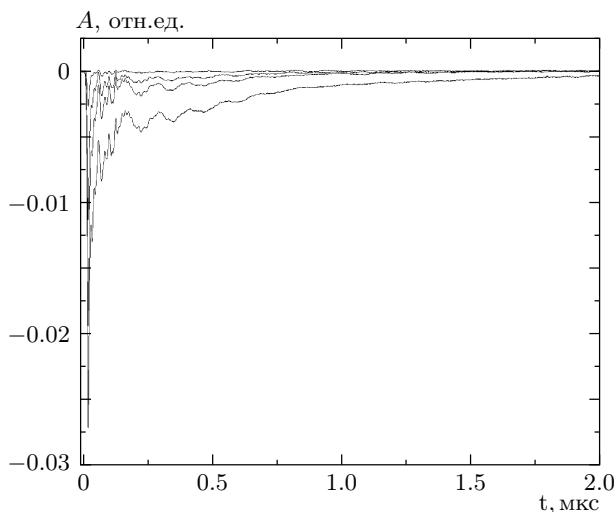
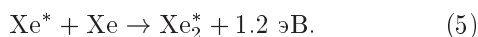


Рис. 8. Электронный ток в промежутке сетка–катод. Толщина кристалла 1 мм, $U_{cg} = 300$ В, $U_{ga} = 250, 290, 310, 330$ В

разницы межатомных расстояний в кристалле ксенона и в двухцентровом экситоне, либо как следствие преодоления хвостом распределения дрейфующих электронов по энергии узкого ($\Delta E \approx 0.01$ эВ ≈ 100 К) пика рассеяния электронов на структуре отрицательного иона, дальнейшего набора электроном энергии до $E^* = 8.4$ эВ, достаточной для образования одноцентрового экситона Xe^* , и процесса



В последнем случае скорость набора электроном энергии E^* должна существенно зависеть от температуры, особенно при $T < 100$ К. К сожалению, для $T = 125$ К (см. рис. 7б) сигнал от поверхности кристалла слишком слаб для надежного определения квантового выхода, но тем не менее можно утверждать, что как квантовый выход, так и эффективность преобразования при 125 К выше, чем при 77 К.

Значительно сложнее интерпретировать результаты измерений электронного тока в промежутке сетка–анод (типичный вид такого сигнала представлен на рис. 8). В частности, и в отсутствие положительной обратной связи через УФ-излучение на сигнале должно наблюдаться плато, отвечающее току дрейфующих через твердый ксенон первичных электронов. Помимо всего прочего, неконтролируемый вклад в сигнал дает газовый промежуток между сеткой и верхней поверхностью твердого ксенона, входящий в электрическую цепь. Характерной особен-

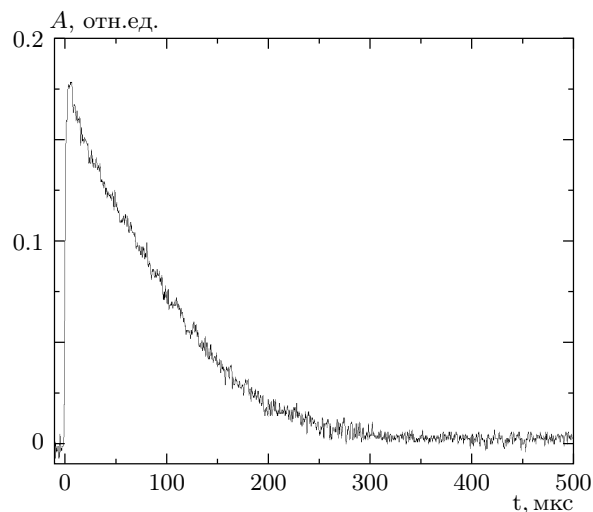


Рис. 9. Импульс видимого свечения при разряде через твердый ксенон (1 мм) конденсатора емкостью 10 мкФ, заряженного до 300 В

ностью наблюдаемых сигналов является воспроизводимое наличие квазипериодических осцилляций с периодами 50 нс в передней части сигнала и около 150 нс на его хвосте; их происхождение не вполне понятно, во всяком случае они не связаны с радиотехническими процессами в системе регистрации.

После достижения порога самоподдерживающегося разряда, естественно, нет необходимости в создании первичных электронов с помощью лазера — непрерывный разряд возникает самопроизвольно при подаче необходимых напряжений U_{cg} и U_{ga} . Он сопровождается чрезвычайно ярким свечением, характеризующимся непрерывным спектром во всей видимой области. Интенсивность этого свечения на много порядков превышала интенсивность свечения газового разряда над твердым ксеноном и в заполненной ксеноном ячейке без образца. Естественно, что даже в присутствии ограничивающего ток разряда сопротивления 1 МОм непрерывный разряд приводил, в конце концов, к плавлению ксенона и даже к прожиганию сетки. Поэтому для определения достижимых тока разряда и интенсивности сопровождающего его свечения был использован следующий прием: источник напряжения катод–сетка заменяли конденсатором емкостью $C = 10$ мкФ, заряжаемым до напряжения, превышающего пороговое для возникновения разряда (при этом убирали также и ограничивающее ток сопротивление). Импульс свечения разряда, регистрируемый с помощью фотодиода представлен на рис. 9. Зарегистрированный для сравнения с того же расстояния (около 2 м) им-

пульс света от фотовспышки направленной на фотодиод цифровой фотокамеры «Минолта» имел интенсивность всего в три раза выше. Зная напряжение $U_{cg} = 300$ В и характерную длительность свечения $\tau_p = 70$ мкс можно было оценить ток разряда $J \approx CU_{cg}/2\tau_p = 20$ А.

5. ВЛИЯНИЕ ПРИМЕСЕЙ

Визуальное наблюдение области видимого свечения показывает, что оно исходит из объема кристалла и не может быть люминесценцией конструкционных материалов, возбуждаемой экситонным ВУФ-излучением. Сам ксенон также не может возбуждаться, поскольку он прозрачен в спектральной области своей эмиссии [15], кроме того, в этом случае спектр должен был бы состоять из узких полос [9]. Поэтому наблюдаемое интенсивное свечение безусловно является следствием возбуждения растворенных в твердом ксеноне малых примесей либо ВУФ-излучением, либо электронным ударом.

К нашему удивлению, при проведении экспериментов в режиме самоподдерживающегося разряда, несмотря на большой ток, ни ток разряда, ни его свечение со временем не уменьшались, хотя вдали от порога сигналы тока уменьшались (из-за образования неподвижных отрицательных ионов кислорода и компенсации их зарядом приложенного к кристаллу напряжения) при на порядки меньших значениях суммарного заряда, протекающего через образец. «Отбеливание» отрицательных ионов может быть вызвано как УФ-светом, так и высокоэнергетичными электронами.

Для того чтобы проанализировать проблему более количественно, необходимо знать скорость образования отрицательных ионов. Ее расчет представляет собой непростую задачу, поскольку сечение электронного захвата сильно убывает с увеличением энергии электрона, и поэтому эта скорость весьма чувствительна к виду функции распределения электронов по энергии при малых энергиях (диссоциативное прилипание электрона к O_2 , сечение которого возрастает с энергией, вряд ли возможно в твердом теле) [16]. Более рационально воспользоваться экспериментально измеренной длиной Λ затухания тока дрейфующих через жидкий ксенон избыточных электронов (поскольку все характеристики электронного дрейфа через жидкий и твердый ксенон близки, такая оценка представляется надежной). В жидком ксеноне, очищенном близким к нашему методом, $\Lambda \approx 2$ м [17] при близ-

ких значениях напряженности электрического поля. Поскольку истинный путь электрона длиннее его дрейфового пути в v_T/v_d раз (здесь v_T — скорость электрона, определяемая его кинетической энергией, $v_T = 10^8$ см/с для электронов с энергией несколько электронвольт), длина свободного пробега электрона до захвата его примесью составляет

$$\lambda = \frac{1}{\sigma_a n} = \frac{v_T}{v_d} \Lambda, \quad (6)$$

где σ_a — эффективное сечение захвата, n — концентрация электроотрицательной примеси. Если принять оценку остаточной концентрации кислорода в ксеноне, приведенную в [17], $n \approx 10^{13}$ см⁻³, то из (6) следует, что эффективное сечение прилипания электрона $\sigma_a = 5 \cdot 10^{-19}$ см². Столь малая величина сечения свидетельствует, с одной стороны, о высокой средней энергии дрейфующих в жидком ксеноне электронов (сечение прилипания электрона в газе при его энергии $T = 0.1$ эВ еще составляет около 10^{-15} см² [16]), а с другой, об отсутствии в конденсированной фазе процесса диссоциативного прилипания электрона к кислороду (в газе при $T_e \approx 8$ эВ его сечение равно $5 \cdot 10^{-17}$ см² [16]).

Для типичных условий наших экспериментов концентрация отрицательных ионов, достаточная для полной компенсации приложенного напряжения, составляет 10^{11} см⁻³ [3]. При анализе того, какой из процессов может быть ответственным за «отбеливание»²⁾ отрицательных ионов в твердом ксеноне, с этой величиной следует сравнивать стационарную концентрацию n^- ионов O_2^- , оцениваемую из равенства скоростей их образования и распада. Соответственно, для механизмов разрушения отрицательных ионов при электронном ударе получим

$$n^- = \left(\sigma_{ed} \Lambda \frac{v_T}{v_d} \right)^{-1}, \quad (7)$$

а при фотодиссоциации —

$$n^- = (\sigma_{pd} \Lambda \eta)^{-1}, \quad (8)$$

где σ_{ed} и σ_{pd} — сечения соответствующих процессов. В газе $\sigma_{ed} \approx 5 \cdot 10^{-15}$ см² при $T_e = 5-20$ эВ, а $\sigma_{pd} = 1 \cdot 10^{-17}$ см² для $\lambda = 150-180$ нм [16]. Используя эти значения, получаем, что при отбеливании электронами стационарная концентрация O_2^- равна всего 10^9 см⁻³ и этот процесс действительно в состоянии поддерживать постоянный электронный ток

²⁾ Процесс отрыва электронов от ловушек под действием света.

через ксенон. При фотораспаде $n^- \approx 3 \cdot 10^{13} \text{ см}^{-3}$, так что его недостаточно, чтобы поддерживать концентрацию O_2^- достаточно низкой. Соотношения (7) и (8) имеют прозрачный физический смысл — путь, проходимый электроном в среде, в $v_T/v_d \approx 10^3$ раз больше, чем путь фотона, а сечения ионизации электронным ударом много больше, чем фотоионизации. Поэтому, несмотря на высокий квантовый выход электролюминесценции, электронная компонента «плазмы» более активна в разрушении отрицательных ионов, чем фотонная.

Аналогичные соображения приводят к выводу о том, что наблюдаемое нами сильное видимое свечение твердого ксенона при протекании через него электронного тока вызвано возбуждением примесей электронным ударом, а не фотовозбуждением.

Анализ соотношения (7) позволяет сделать еще один важный вывод. Если относительное содержание электроотрицательных примесей в ксеноне достаточно велико, скажем, больше $3 \cdot 10^{-8}$, а это для большинства применений еще очень чистое вещество, электролюминесценция твердого ксенона при больших токах должна наблюдаться лишь в течение очень короткого времени, до заполнения «ловушек». Другими словами, для возникновения стационарного разряда через твердый ксенон существует порог по концентрации в нем электроотрицательной примеси.

6. ЗАКЛЮЧЕНИЕ И ВЫВОДЫ

Таким образом, экспериментально доказано, что при дрейфе в умеренно сильных электрических полях через твердый ксенон избыточные электроны многократно возбуждают в нем экситоны, приводя тем самым к интенсивной люминесценции в ВУФ-области спектра. Тот факт, что эффективность люминесценции, будучи достаточно высокой и равной 18%, тем не менее существенно ниже предельной, свидетельствует в пользу предсказания [7] трудности преодоления электронами энергии $T_e = 8.0 \text{ эВ}$, отвечающей образованию отрицательного иона $(Xe^*)^-$. Это означает, что функция распределения стационарно дрейфующих электронов по энергии должна иметь резкий максимум при 8.0 эВ; при этом следующая из результатов экспериментов [11] низкая величина эффективного сечения σ_a захвата электронов кислородом свидетельствует об отсутствии в распределении низкоэнергетичного «хвоста».

Нет никаких сомнений в том, что подобное пове-

дение избыточного электрона должно иметь место и в жидком ксеноне, и в жидких и твердых криптона и аргоне. Другими словами, при дрейфе избыточных электронов через конденсированные ТИГ следует ожидать формирования в них ансамблей квазимонохроматических электронов с энергиями 8.0, 9.6 и 11.2 эВ и эффективной электролюминесценции на длинах волн 172, 148 и 127 нм соответственно для Хе, Кг и Аг. Будучи монохроматичными по энергии, дрейфующие электроны, в отличие от электронных (и, кстати, световых) пучков, движутся хаотично, и их путь в среде приблизительно на три порядка больше, чем толщина образца. Это во столько же раз увеличивает вероятность воздействия электронов на примеси, в том числе намеренно введенные в твердую матрицу. Реализация последней идеи позволит развить новый метод изучения плазмохимических реакций (энергия электронов, будучи даже выше, чем в газовой низкотемпературной плазме, достаточна для осуществления многих процессов электронного возбуждения, диссоциации, диссоциативного прилипания и т. п.) при низких, в том числе очень низких, температурах в условиях матричной изоляции реагентов и продуктов. В «чистых» матрицах это может быть использовано для создания эффективных прямых преобразователей энергии электростатического поля в ВУФ-излучение, в том числе когерентное.

Сконструированная для проведения описанных экспериментов трехэлектродная ячейка может служить прообразом как плазменного твердотельного реактора (при использовании конденсатора в режиме самопроизвольного разряда достигнутая доза составляла 10^{17} электронов в см^3 за импульс, что вполне достаточно для большинства приложений), так и экситонной ВУФ-лампы. Легкость организации объемного разряда через ксенон в трехэлектродной схеме с газовым промежутком и фотокатодом особенно впечатляет в сравнении с двухэлектродной схемой. В последнем случае для пробоя слоя чистого жидкого ксенона толщиной 0.2 мм требуется (как это имело место в системе очистки ксенона) использование лезвиеподобного катода и напряжения 10 кВ, в то время как в первом случае разряд через образец твердого ксенона толщиной 1 мм легко зажигается в плоской геометрии при суммарном напряжении всего 600–700 В.

Авторы благодарны И. М. Ободовскому за полезные советы и А. Ключкову за помощь в проведении экспериментов, Б. М. Смирнову за плодотворные дискуссии и предоставление рукописи его об-

зора [18]. Работа выполнена при поддержке РФФИ (грант № 01-03-32247), Гранта поддержки ведущих научных школ РФ (№ 00-15-97400) и Совместного гранта РФФИ–NWO (№ 047-008-015).

ЛИТЕРАТУРА

1. E. Aprile and M. Suzuki, IEEE Trans. Nucl. Sci. **36**, 311 (1989).
2. E. B. Gordon, V. V. Khmelenko, and O. S. Rzhnevsky, Chem. Phys. Lett. **217**, 605 (1994).
3. Е. Б. Гордон, О. С. Ржевский, В. В. Хмеленко, КЭ **21**(3), 207 (1994).
4. S. S.-S. Huang and G. R. Freeman, Phys. Rev. A **24**, 714 (1981).
5. A. S. Schussler, J. Burghoorn, P. Wyder et al., Appl. Phys. Lett. **77**, 2786 (2000).
6. A. S. Schussler, PhD Thesis, High Magnetic Field Lab., Grenoble, France (1998).
7. Е. Б. Гордон, А. Ф. Шестаков, ФНТ **27**, 1192 (2001).
8. Ю. П. Райзер, *Физика газового разряда*, Наука, Москва (1992).
9. Е. В. Савченко, И. Я. Фуголь, *Криокристаллы*, ч. 4, под ред. Б. И. Веркина, А. Ф. Приходько, Наукова Думка, Киев (1983).
10. A. Usenko, G. Frossati, and E. B. Gordon, Phys. Rev. Lett. (2003), in press.
11. E. Aprile, A. Bolotnikov, D. Chen et al., Nucl. Instr. Meth. A **343**, 129 (1994).
12. S. G. Pokachalov, M. A. Kirsanov, A. A. Kruglov, and I. M. Obodovski, Nucl. Instr. Meth. A **327**, 159 (1993).
13. G. Ascarelli, J. Phys. Chem. **84**, 1193 (1980).
14. Е. М. Гуцин, А. А. Круглов, И. М. Ободовский, ЖЭТФ **82**, 1114 (1982); [Sov. Phys. JETP **55**, 650 (1982)].
15. H. Nahme and N. Schwentner, Appl. Phys. B **51**, 273 (1990).
16. B. M. Smirnov, *Negative Ions*, McGraw-Hill, New York (1982).
17. M. Ichige, E. Aprile, T. Doke et al., Nucl. Instr. Meth. A **333**, 355 (1993).
18. Б. М. Смирнов, УФН **172**, 1411 (2002).