

В.М. Климкин, В.Е. Прокопьев, В.Г. Соковиков

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ ВЗАИМОСВЯЗИ ИОННЫХ И АТОМНЫХ СПЕКТРОВ Eu В He–Eu-СМЕСИ

Методами селективного возмущения населенностей состояния 7D_j первого иона европия в газовом разряде установлена связь указанного состояния с системой $z^{10}D_j - a^{10}D_j^0$ -переходов в атоме европия. Предложен механизм создания инверсии в He–Eu-лазере, отличительной особенностью которого является релаксация метастабильных состояний ${}^7D_j^0$ иона в процессе захвата электронов и возбуждения атома Eu в автоионизационные состояния.

Смесь паров европия с гелием, в которой наблюдается генерация с резонансных 7,9P_j на метастабильные ${}^7,9D_j^0$ уровни иона европия при возбуждении электрическим разрядом, является уникальной лазерной средой. Уникальность заключается в том, что метастабильные состояния ${}^7D_j^0$ при стационарных условиях возбуждения релаксируют с временами $\sim 10^{-9}$ с, что обеспечивает стационарную генерацию, ограниченную только контракцией разряда. Важной особенностью этой смеси является наличие высокого давления гелия – оптимальное давление должно быть много выше атмосферного, а пороговое давление He для возникновения генерации на переходе ${}^7P_4 \rightarrow {}^7D_3^0$ с длиной волны $\lambda = 1,002$ мкм – более 180 Торр.

Несмотря на ряд работ [1, 2, 3], посвященных экспериментальному исследованию этой смеси, удовлетворительного механизма релаксации метастабильных состояний ${}^7D_j^0$ не найдено. В настоящее время имеются, по крайней мере, два варианта такого механизма [1]. В первом варианте релаксация происходит в ходе бинарных столкновений атомов He с возбужденными ионными состояниями европия при пересечении термов квазимолекул $(EuHe)^{+*}$. Во втором предполагается рекомбинация иона европия, т.е. релаксация протекает через смещенные состояния атома Eu, образуемые в ходе захвата электронов ионами европия, и стабилизации этого процесса за счет столкновений с атомами гелия. Атом Eu в смещенном спектре может ионизоваться в возбужденные или основное состояния Eu^+ , излучением либо столкновениями перейти в обычный атомный спектр. Основным аргументом в пользу этого ранее не встречавшегося в газовых лазерах механизма является очень богатый, практически квазинепрерывный спектр смещенных состояний атома Eu в диапазоне 3÷4 эВ над порогом ионизации атома [4]. Поэтому представляет интерес дальнейшее изучение физических процессов в He–Eu-смеси. В настоящей статье экспериментально исследовано возмущение населенностей ионных и атомных состояний Eu при резонансном оптическом воздействии на один из оптических переходов в спектре иона.

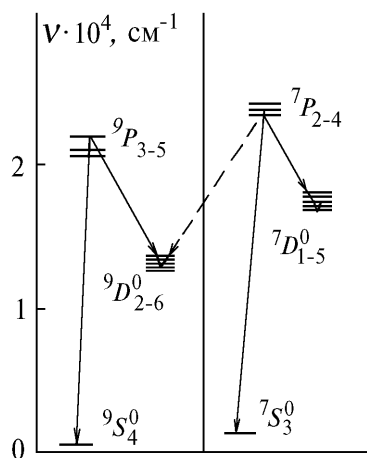
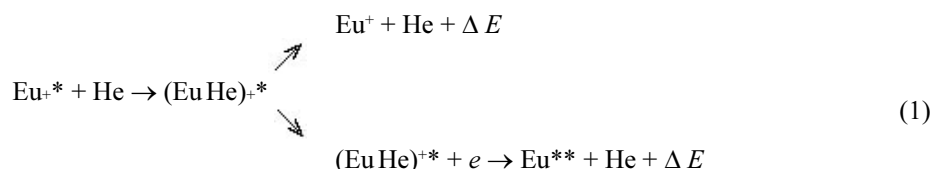


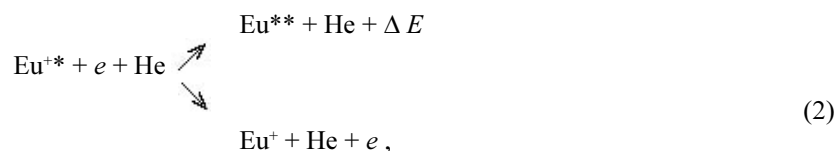
Рис. 1. Упрощенная схема уровней и оптических переходов в спектре иона европия

Для понимания сущности эксперимента и его результатов рассмотрим структуру первых возбужденных состояний Eu^+ , представленную на рис. 1. Она состоит из двух слабо связанных систем с мультиплетностью 7 и 9. При импульсном газоразрядном возбуждении в каждой из систем наблюдается типичная <самоограниченная> генерация. Стационарная, ограниченная по времени контракцией разряда инверсия легко достигается на переходах ${}^7P_4 \rightarrow {}^7D_5^0$ при повышенном давлении He.

Как видно из рис. 1, метастабильные состояния ${}^7D_j^0$ являются, в сущности, изолированными. Поэтому простой путь релаксации – неадиабатические столкновения с He с передачей энергии на нижележащие термы – является крайне маловероятным. Два других уже названных выше процесса



и



где $(\text{EuHe})_+^{**}$ – возбужденный молекулярный ион; Eu^{**} – смещенное состояние атома европия, могут быть обнаружены по отклику в спектре атома, если осуществить периодическое воздействие на концентрацию какого-либо компонента смеси. Наиболее просто периодическое возмущение можно внести в плотность состояния $\text{Eu}^{+*} ({}^7D_j^0)$, используя собственное лазерное поле He–Eu-лазера для перекачки части населенности с резонансных состояний ${}^{7,9}P_j$ на метастабильные ${}^7D_j^0$.

В режиме генерации исходное возмущение в скорости накачки состояния ${}^7D_j^0$ легко находится из удельного энергосъема лазера и его типичное значение составляет $\Delta\beta = 2 \cdot 10^{12}$ частиц·см⁻³ за импульс возбуждения длительностью 1 мкс. Эта довольно существенная величина возмущения позволяла надеяться, что если даже малая часть возмущения достигнет атомного спектра, то его можно обнаружить экспериментально как рост интенсивности спектральных линий.

Для исследования оптического отклика в спектре атома при возмущении населенностей в спектре иона была использована установка, схема которой приведена на рис. 2.

Установка состояла из He–Eu-лазера 1 с селективным, настроенным на $\lambda = 1,002$ мкм резонатором. В резонатор лазера был введен обтюратор 2, периодически перекрывающий резонатор с частотой 1 кГц. Разрядная трубка имела боковое окно для наблюдения за спонтанной эмиссией разряда. Разряд возбуждался на частоте ~ 10 кГц импульсами длительностью 1 мкс, при этом обеспечивался необходимый температурный режим трубки ($\sim 600^\circ\text{C}$). Излучение трубки проходило через монохроматор 3 и регистрировалось ФЭУ 4. Высокая частота следования импульсов возбуждения позволяла использовать широкополосную систему выделения сигналов из шумов, основанную на принципе стробирования с последующим преобразованием сигналов в низкочастотную область. Для этого сигналы ФЭУ в виде последовательности импульсов с частотой 10 кГц, промодулированные по амплитуде частотой 1 кГц, усиливались широкополосным усилителем, выход которого подключался к пиковому вольтметру 7 электронным ключом 6 на время 0,5 мкс синхронно с возбуждающими импульсами. Пиковый вольтметр имел постоянную времени 10^{-3} с, переменная составляющая с частотой 1 кГц на выходе пикового вольтметра усиливалась селективным усилителем 8, детектировалась синхронным детектором 9 и документировалась самописцем 10.

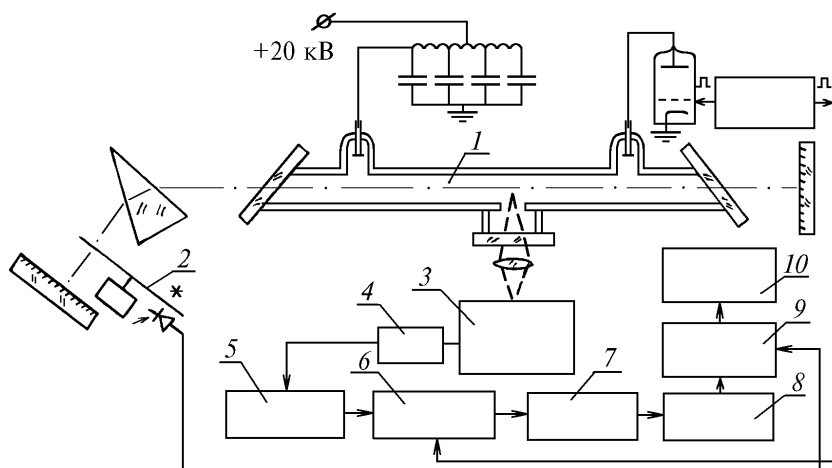


Рис. 2. Блок-схема экспериментальной установки

Такое техническое решение системы регистрации позволяло регистрировать амплитуду и фазу возмущений (ослабление или рост) интенсивностей линий при наличии или отсутствии лазерного поля в резонаторе.

Если обтюратор помещался перед монохроматором, то установка регистрировала полное боковое излучение разряда. Записи полного спектра необходимы для идентификации линий, на которых наблюдается модуляция интенсивностей, и для оценки глубины модуляции.

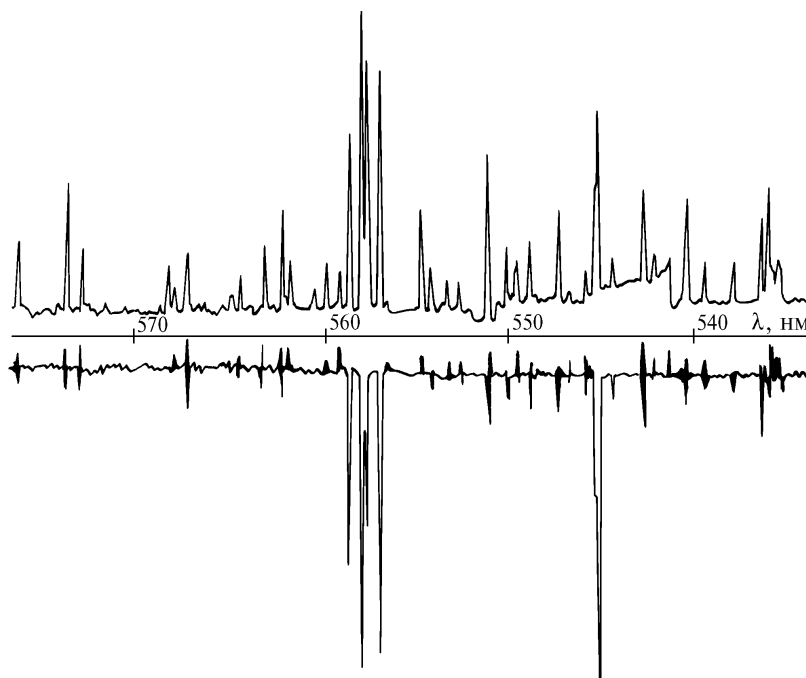


Рис. 3. Фрагменты записей полного спектра (вверху) и спектра с модулятором в резонаторе лазера (внизу)

На рис. 3 представлен один из фрагментов записи сигналов, соответствующий зеленой области спектра. В этой области излучают в основном атомные линии $E\alpha$, плотность их не слишком велика, так что спектр разрешается монохроматором МДР-3. Как видно из записи, почти на всех линиях имеются сигналы модуляции разных знаков на уровне, близком к шумам. Однако есть ряд линий, на которых сигнал модуляции весьма значителен. Список таких линий приведен в таблице. Все линии принадлежат переходам $z^1D_j \rightarrow a^1D_j^0$ ($32117 \div 30945$) \rightarrow ($12923 \div 13778$ cm^{-1}) конфигураций $4f^7(8D^0)5d(9D^0)6p$ и $4f^7(8s^0)5d(9D^0)6s$ соответственно. Таким образом, взаимо-

связь ионного и атомного спектров легко обнаруживается. В таблице представлен список линий, на которых наблюдалась значительная модуляция населенностей.

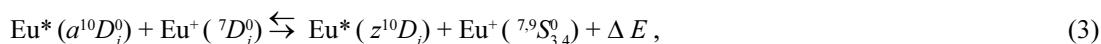
Линии атомного спектра с глубиной модуляции интенсивностей больше 1%

Длина волны, нм	Верхнее состояние $z^{10}D_j; E, \text{см}^{-1}$	Нижнее состояние $a^{10}D_j^0; E, \text{см}^{-1}$
545,1		13/2, 13779
535,7	13/2, 32117	11/2, 13547
540,2		9/2, 13322
547,2	11/2, 31726	11/2, 13457
557,0		13/2, 13779
545,2		7/2, 13049
557,7	9/2, 31382	11/2, 13457
548,8		5/2, 12923
552,6	7/2, 31138	7/2, 13049
558,0		9/2, 13222
554,7		5/2, 13049
558,6	5/2, 30945	7/2, 13049

Исследования более коротковолнового участка спектра оказались безуспешными, т.к. спектр разряда в этом диапазоне практически не разрешался из-за чрезвычайно высокой плотности линий.

Анализируя зарегистрированный отклик в атомном спектре при возмущениях потока частиц в ионном спектре, следует отметить ряд его особенностей. Во-первых, если учесть чрезвычайно развитый в силу конкуренции внешних и внутренних оболочек спектр Eu, то следует отметить, что существенные возмущения населенностей (~8%) проявляются только в указанной выше системе переходов мультиплетности 10. Во-вторых, имеется корреляция между интенсивностью линий и их модуляцией – по крайней мере, в представленном фрагменте наиболее интенсивные линии принадлежат уже упоминавшейся системе $z^{10}D_j \rightarrow a^{10}D_j^0$. Далее, в представленном фрагменте имеется резонансная линия $\lambda = 576,6 \text{ нм}$ и еще ряд линий, на которых модуляции либо нет совсем, либо она не превышает уровня шумов. И наконец, есть слабо промодулированные линии (~1%), но фаза модуляции противоположна к рассмотренной выше совокупности линий, представленных на рис. 3.

Указанная выше спектральная селективность модуляции линий требует анализа возможности возбуждения состояний $z^{10}D_j$ в каких-либо резонансных процессах, например, прямых ион-атомных столкновениях с участием возбужденных состояний как атома, так и иона. Анализ показал, что действительно в данном случае наблюдается энергетический резонанс для реакции



однако оценки абсолютных скоростей возбуждения β состояний $z^{10}D_j$ с основного состояния атома β_0 и по реакции (3) – дают β_3 , равные приблизительно $(10^{-3} \div 10^{-4})\beta_0$ в силу малости концентраций частиц, участвующих в реакции (3). Если учесть только энергетический резонанс реакций типа (3), то модуляцию следовало бы ожидать еще на ряде линий в приведенном выше фрагменте спектра, но такой эффект не наблюдается.

Линии, представленные в таблице, имеют довольно малые сечения (10^{-19} см^2) электронного возбуждения с основного состояния. В связи с этим отмеченная выше корреляция между интенсивностями линий и наблюдаемой модуляцией свидетельствует об их преимущественном возбуждении <сверху> из состояния ионизации.

Анализ спектральных линий с малыми коэффициентами модуляции, фаза которой противоположна модуляции на переходах $z^{10}D_j \rightarrow a^{10}D_j^0$, показал, что линии, имеющие указанные модуляционные признаки, имеют общие с системой $z^{10}D_j \rightarrow a^{10}D_j^0$ нижние уровни.

Совокупность изложенных фактов однозначно показывает, что лазерный канал возбуждения состояний ${}^7D_j^0$ в спектре иона европия приводит к дополнительному (~8%) росту населенности состояний $z^{10}D_j, a^{10}D_j^0$ в спектре атома. Сопоставление абсолютных скоростей релаксации состояния ${}^7D_j^0$ в ионном спектре и скоростей возбуждения состояний $z^{10}D_j$ с основного уровня атома с использованием данных [5, 6] по сечениям электронного возбуждения показывает, что наблюдаемый нами поток частиц, обеспечивающий рост интенсивности линий в атомном спек-

тре, равный 8%, соответствует 1% от потока частиц, участвующих в генерации $\lambda = 1,002$ мкм. Возможно, что существуют другие каналы релаксации в спектре атома, но наиболее вероятно, что основной поток частиц возвращается в первое состояние иона в процессе автоионизации.

На основе изложенных выше результатов мы предлагаем модель создания инверсии на переходах иона европия, представленную на рис. 4.

В рамках предложенной нами модели He–Eu-лазер должен обладать, с одной стороны, некоторыми признаками лазеров, работающих с резонансных уровней на метастабильные, с другой – признаками лазеров, работающих по рекомбинационному механизму. В качестве иллюстрации проявлений рекомбинационного механизма на рис. 5 мы приводим временное поведение генерации на $\lambda = 1,002$ мкм, спонтанного излучения на $\lambda = 617,3$ нм, контролирующей населенность верхнего рабочего состояния 7P_4 , тока разряда и поглощения на $\lambda = 1,002$ мкм. Как следует из этого рисунка, населенность верхнего уровня в позднюю фазу разряда падает, однако среда, наоборот, просветляется и возникает генерация на $\lambda = 1,0019$ мкм. Это возможно лишь в случае, если скорость релаксации нижнего (возможно, и верхнего) уровня 7D_j возрастает к концу импульса тока синхронно с ростом концентрации электронов. В этой же связи обращают на себя внимание сложные переходные процессы в начальной стадии разряда при изменении плотности паров Eu. При повышенной плотности паров ($\sim 10^{-1}$ Торр) генерация наблюдается только в первой фазе разряда и имеет характерную длительность 200 нс. По мере уменьшения концентрации Eu при прочих постоянных условиях генерация возникает в средней фазе разряда и, наконец, при малых давлениях Eu ($\sim 10^{-2}$ Торр) генерация наблюдается в завершающей фазе импульса тока.

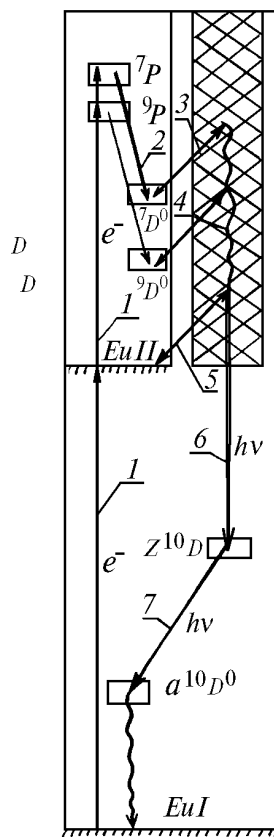


Рис. 4. Схема возбуждения и релаксации рабочих состояний в He–Eu-лазере ($\lambda = 1,002$ мкм): 1 – ионизация и возбуждение электронным ударом; 2 – лазерный переход; 3 – рекомбинация в смещенные состояния атома; 4, 6 – столкновительная и излучательная стабилизация рекомбинации; 5 – автоионизация; 7 – один из путей излучательной релаксации

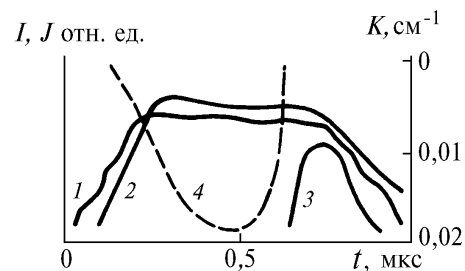


Рис. 5. Осциллограммы тока I (I), спонтанного излучения $J(\lambda = 617,3$ нм) (2), генерации (3) и поглощения излучения $k\lambda = 1,002$ мкм (4) при $P_{\text{He}} = 180$ Торр в He–Eu-смеси

В указанном выше диапазоне концентраций Eu разряд переходит от проводимости, определяемой металлом, к проводимости, связанной с ионизацией буферного газа, с соответствующим изменением параметра E/p , и характерных времен развития разряда. Учтя это обстоятельство, становится ясно, что генерация наблюдается только в том случае, когда ионы европия находятся в достаточно плотной матрице <горячих> электронов – это характерный признак лазеров, работающих на переходах с резонансных на метастабильные уровни. В первом случае такие условия создаются за счет ионизации самого европия, но на короткое время, в последнем случае эти условия существуют стационарно, но за счет ионизации гелия.

1. Климкин В.М., Прокопьев В.Е., Соколов В.Г. // Эффективные газоразрядные лазеры на парах металлов. Томск: ИОА СО АН СССР, 1976. С. 27–34. Климкин В.М., Мальцев А.Н., Прокопьев В.Е., Соколов В.Г. // Там же. С. 35–45.
2. Бохан П.А., Фадин Л.В. // Оптика и спектроскопия. 1982. Т. 52. N 4. С. 626–629.
3. Бохан П.А. // Письма в ЖЭТФ. 1985. Т. 42. N 8. С. 335–337.
4. Козлов М.Т. Спектры поглощения паров металлов в вакуумном ультрафиолете. М.: Наука, 1981. С. 252–254.
5. Шимон Л.Л., Гарга И.И., Головчак Н.В. // Оптика и спектроскопия. 1977. Т. 43. N 5. С. 998–1000.
6. Головчак Н.В., Гарга И.И., Шимон Л.Л. // Оптика и спектроскопия. 1978. Т. 44. N 1. С. 29–31.

Институт оптики атмосферы СО РАН,
Томск

Поступила в редакцию
2 марта 1993 г.

V.M. Klimkin, V.E. Prokop'ev, V.G. Sokolov. **An experimental study of the correlation between ion and atomic spectra of Eu in the He–Eu mixture.**

In this paper a correlation between ${}^7D_j^0$ states of Eu^+ and the atomic transitions system $z^{10}D_j - a^{10}D_j^0$ in a gas discharge plasma has been revealed by the method of selective perturbation of the $\text{Eu}^+ {}^7D_j^0$ states populations. The mechanism of creating inversion in He-Eu⁺ laser is proposed. The main feature of this mechanism is a relaxation of the $\text{Eu}^+ {}^7D_j^0$ metastables in the process of electron capture by producing the auto-ionization states of europium.