

## Генерация вынужденного излучения на переходах в основное и метастабильные состояния иона европия при оптической накачке

В.Г. Соковиков<sup>1</sup>, В.М. Климкин<sup>1</sup>, В.Е. Прокопьев<sup>2\*</sup>

<sup>1</sup>Институт оптики атмосферы им. В.Е. Зуева СО РАН  
634021, г. Томск, пл. Академика Зуева, 1

<sup>2</sup>Институт сильноточной электроники СО РАН  
634055, г. Томск, пр. Академический, 2/3

Поступила в редакцию 5.03.2010 г.

Сообщается об экспериментальном обнаружении и исследовании селективного высокоэффективного канала двухфотонного возбуждения резонансных состояний иона европия  $6p^7P_J$  и  $6p^9P_J$  с основного состояния атома  $6s^8S_{7/2}$  излучением ультрафиолетовых лазеров на красителе ( $\lambda_1 = 266,0$  нм,  $\lambda_2 = 256,9$  нм) и четвертой гармоники Nd:YAG-лазера ( $\lambda_{\text{н}} = 266,1$  нм) в смеси гелия и паров европия. При облучении этой системы на длинах волн, указанных выше, реализованы инверсии населенностей и вынужденное излучение на переходах с резонансных уровней  $7,9P_J$  в основное  $9S_4^0$  и метастабильные  $7,9D_J^0$  состояния иона европия.

*Ключевые слова:* оптическая накачка, лазеры на парах металлов, фотоионизация, смещенные состояния, безызлучательная релаксация; optical pumping, metal vapor lasers, photoionization, shifted states, nonradiative relaxation.

### Введение

Газоразрядный лазер на переходах с резонансных ( $r$ )  $7,9P_J$  на метастабильные ( $m$ ) уровни  $7,9D_J^0$  иона европия является первой лазерной средой, в которой удалось экспериментально реализовать плавный переход от импульсного самоограниченного режима работы к квазистационарному столкновительному при увеличении давления гелия [1–3]. Относительно высокие выходные энергетические параметры обнаруженной квазинепрерывной генерации на переходах с резонансных на метастабильные состояния иона  $\text{Eu}^+$  в ближней инфракрасной области с  $\lambda = 1361,1$  ( $9P_5 - 7D_5^0$ ) и 1001,9 нм ( $7P_4 - 7D_5^0$ ) позволяли надеяться на реализацию эффективных столкновительных лазерных рабочих сред на электронных переходах в видимой области в парах атомов металлов в смеси с инертными газами.

В работах [4, 5] экспериментально показано, что в газовом разряде в смеси паров редкоземельного элемента европия с инертными газами наблюдается уникальное физическое явление – сверхбыстрая селективная релаксация метастабильных состояний  $7D_5^0$ . Измеренные времена жизни этих уровней уменьшаются обратно пропорционально концентрации гелия и составляют  $(4 \div 10) \cdot 10^{-9}$  с при атмосферном

давлении. Несмотря на определенные усилия, направленные на выяснение механизма столь быстрой релаксации метастабильных уровней иона европия, физические процессы, которые обуславливают это явление, до сих пор не установлены. Это объясняется, в частности, тем, что в плазме газового разряда нет возможности независимого контроля большинства параметров исследуемой среды при изменении одного из них, например концентрации частиц. В связи с этим селективное выделение и исследование определенного элементарного физического процесса на фоне их большого количества в плазме газового разряда очень сложны.

Ранее сообщалось об обнаружении каналов эффективной селективной двухфотонной ионизации (ДФИ) атомов стронция [6], бария [7, 8] и тулия [9] излучением УФ-лазеров. В результате такой ионизации были получены ионы в возбужденных состояниях  $E^{+*}$ , и в том числе резонансных ( $r$ ), с которых возможны радиационные переходы в нижележащие основное ( $g$ ) и метастабильные ( $m$ ) состояния. При достаточно высокой скорости оптической накачки на электронных  $r-g$ - и  $r-m$ -переходах этих ионов были получены инверсия населенностей (ИН) и вынужденное излучение.

Значительно раньше на тех же  $r-m$ -переходах (с резонансных на метастабильные уровни) ионов бария и стронция была получена импульсная генерация в плазме при газоразрядном импульсном возбуждении [3].

Это обстоятельство позволяет исследовать элементарные процессы заселения, распада и переноса

\* Владимир Григорьевич Соковиков; Владимир Михайлович Климкин; Владимир Егорович Прокопьев (prokop@ogl.hcei.tsc.ru).

энергии возбужденных состояний ионов как в слабоионизированной плазме, созданной путем селективной оптической накачки, так и в плазме газового разряда спектроскопическими методами. Кроме того, становится возможным получение информации об активной среде газоразрядных лазеров на основе сравнения и сочетания газоразрядного и оптического методов возбуждения, например методом модуляции населенности энергетических уровней собственным [2] и внешним лазерным излучением.

Таким образом, экспериментально установленный факт селективного возбуждения первых резонансных уровней ионов стронция, бария и тулия, непосредственно с основного состояния атома, указывает на новые возможности для изучения механизмов создания инверсии на  $r$ - $m$ -переходах ионов.

В свою очередь, решение задачи, имеющей целью изучение процесса создания инверсии в He-Eu<sup>+</sup>-лазере, основанное на исследовании оптических переходов в ионе и атоме европия, на первом этапе сводится к поиску каналов селективного возбуждения первых резонансных уровней иона Eu<sup>+</sup>(<sup>7,9</sup>P<sub>J</sub>).

Энергетическое условие заселения возбужденных уровней иона излучением видимого и УФ-диапазонов можно записать следующим образом:  $2h\nu_n \geq I + E^{+*}$ , где  $h\nu_n$  — энергия фотона накачки;  $I$  — первый потенциал ионизации атомов;  $E^{+*}$  — энергия возбужденного состояния иона, с которого возможен вынужденный переход в нижележащие состояния, в том числе в основное и метастабильные состояния. Поскольку потенциал ионизации атомов большинства элементов, как правило, превышает 4–5 эВ, то для заселения возбужденных состояний ионов необходимо использовать многоквантовые процессы ионизации, идущие с поглощением двух и более фотонов видимого и УФ-диапазона спектра.

Очевидно, что накачка возбужденного состояния иона с энергией  $E^{+*}$  будет особо эффективной и селективной, если ионизация атома идет через авто-

ионизационные состояния —  $E_a$  нейтральной частицы, с относительно большим временем жизни ( $10^{-10} \div 10^{-11}$  с) и энергией  $E_a \geq I + E^{+*}$ . Для двухфотонного возбуждения наиболее низкорасположенных резонансных уровней  $6p^7P_J$  и  $6p^9P_J$  иона европия, являющихся верхними рабочими уровнями столкновительного лазера, требуется излучение с  $\lambda < 270$  нм.

В настоящей статье представлены результаты экспериментального исследования каналов двухфотонного возбуждения резонансных состояний иона европия  $6p^7P_J$  и  $6p^9P_J$  с основного состояния атома  $6s^8S_{7/2}$  ультрафиолетовым излучением вторых гармоник лазера на красителе.

## Экспериментальная установка

Экспериментальная установка состояла из источника лазерного УФ-излучения, кюветы для получения паров металлов и системы регистрации интенсивности и спектрального состава излучения (рис. 1).

В эксперименте использовалась лазерная система на красителях с накачкой излучением эксимерного XeCl-лазера, дополненная каскадом удвоения частоты на кристалле ВаВ<sub>2</sub>О<sub>4</sub>. Эта система генерировала линейно поляризованное УФ-излучение в диапазоне 270–240 нм с энергией 100–200 мкДж при длительности 5 нс. Селекция ультрафиолетового излучения накачки осуществлялась с помощью поворота кварцевой призмы  $P$  и отверстия в непрозрачном экране (см. рис. 1).

Пары европия создавались в вакуумной кювете, состоящей из кварцевой трубки, снабженной приклеенными кварцевыми окнами и системой вакуумной откачки. Длина кварцевой оболочки составляла 35 см. Внутри нее размещалась керамическая трубка — вкладыш из окиси бериллия диаметром 1,2 см.

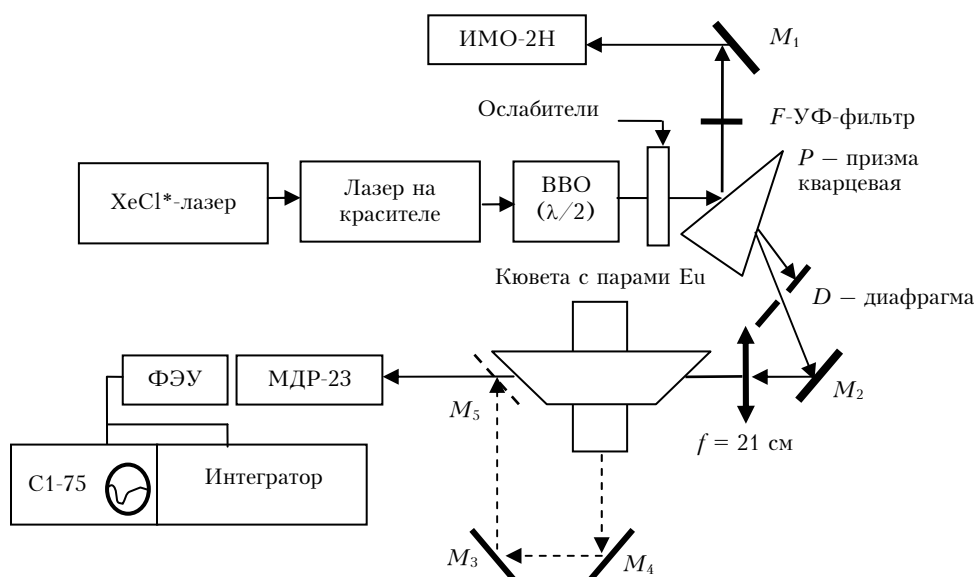


Рис. 1. Блок-схема экспериментальной установки

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

В трубку из BeO помещались кусочки металлического европия. Кювета имела внешний нагреватель, который позволял создавать столб паров протяженностью 12 см. Температура вкладыша определялась термпарой или пирометром. Эксперимент проводился при давлении насыщенных паров европия, равном  $0,1 \pm 1$  торр. В качестве буферного газа использовался гелий особой чистоты. Излучение накачки фокусировалось кварцевой линзой с фокусным расстоянием  $f = 21$  см в центр кюветы с парами.

Для анализа спектрального состава излучения использовался монохроматор МДР-23 со сменными решетками 600 и 1200 штрихов/мм. Излучение в видимом и УФ-диапазоне регистрировалось с помощью ФЭУ-100, а в инфракрасном – ФЭУ-83. Для исследования формы импульсов использовались германиевый лавинный фотодиод ЛФД-2 и скоростные осциллографы.

Для обнаружения наличия эмиссии электромагнитное излучение, возникающее в кювете при накачке лазерным излучением, регистрировалось визуально или широкополосными приемниками излучения. Для точного определения его спектрального состава использовались монохроматор МДР-23 и ФЭУ.

Диапазон спектра, в котором проводились исследования, охватывал участок 200–1200 нм.

## Экспериментальные результаты

Анализ спектра атома европия показывает, что в диапазоне перестройки частот лазера накачки имеются более 50 атомных состояний, которые можно использовать в качестве промежуточных в схеме ДФИ. Как известно, наличие такого промежуточного уровня является одним из условий эффективной фотоионизации.

Однако при перестройке частоты лазера на красителе эмиссия излучения с резонансных уровней иона наблюдалась только для двух длин волн излучения накачки:  $\lambda_1 = 256,9$  и  $\lambda_2 = 266,0$  нм. Схема возбуждения резонансных состояний иона в этих двух случаях представлена на рис. 2, а.

Для этих длин волн селективность и скорость возбуждения резонансных состояний были столь велики, что в обоих случаях наблюдалось вынужденное излучение в спектре иона европия с длиной волны 664,5 нм на переходе с резонансного  ${}^9P_5$ -уровня на метастабильный  ${}^9D_6^0$ -уровень. Кроме того, при

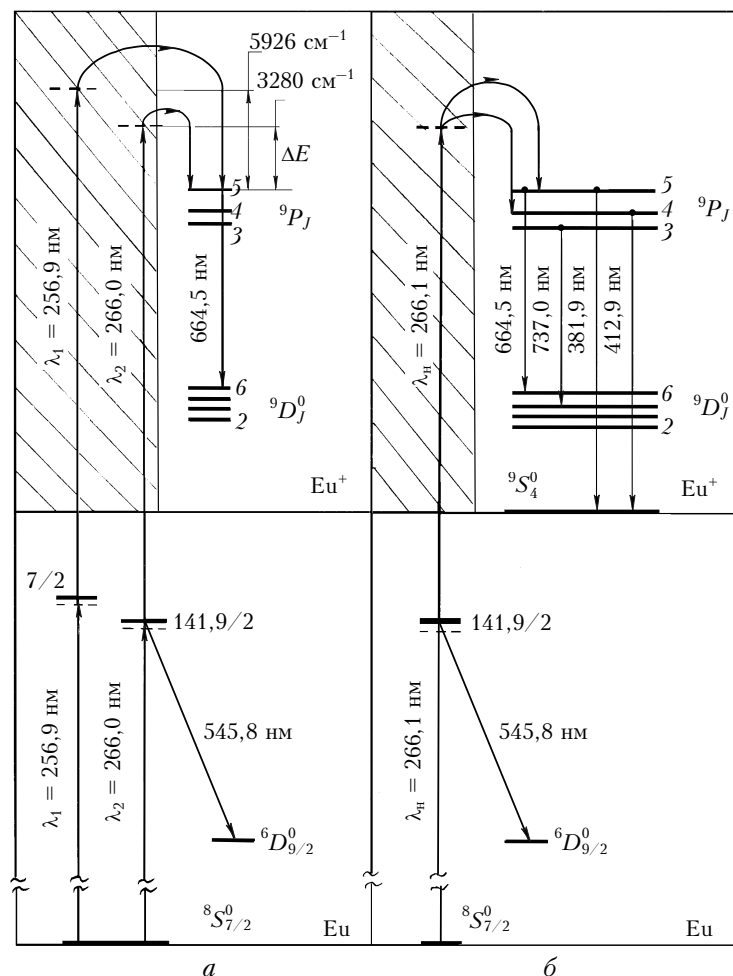


Рис. 2. Схемы возбуждения резонансных состояний иона европия излучением лазера на красителе (а) и четвертой гармоники Nd:YAG-лазера с  $\lambda_{нл} = 266,1$  нм (б). Излучение с  $\lambda = 545,8$  нм в спектре атома наблюдается при квазирезонансе лазерного излучения с промежуточным состоянием атома

накачке через промежуточный уровень [141, 9/2] на этих длинах волн наблюдалось вынужденное излучение на ИК-линиях 1001,9 и 989,9 нм, возникающих соответственно на переходах  ${}^7P_4-{}^7D_5^0$  и  ${}^7P_3-{}^7D_4^0$  (на рис. 2 отсутствуют). Во введении указано, что именно на этих длинах волн и на этих переходах наблюдалась квазинепрерывная столкновительная генерация в газоразрядной плазме паров европия с гелием.

Отсутствие подобного результата при использовании в качестве промежуточных множества других уровней атома европия указывает на то, что возбуждение уровней европия  ${}^{7,8}P_J$  происходит при распаде дискретных автоионизационных состояний атома. На рис. 3 показано взаимное положение промежуточных энергетических уровней атома европия. Вынужденное излучение на ионных  $r-m$ -переходах наблюдалось при перестройке излучения накачки вблизи промежуточных уровней атома европия [141, 9/2] и  $5d6p\,{}^6P_{7/2}$ .

Из рис. 3 следует, что вблизи [141, 9/2] промежуточного уровня расположены уровни [140, 7/2] и  $5d^2\,{}^6P_{7/2}^0$ . Это обстоятельство не позволяет получить корректную перестроенную кривую в длинноволновой области перехода с уровня  $6s^2\,{}^8S_{7/2}^0$  на уровень [141, 9/2]. По этой же причине исследование зависимости интенсивности генерации в ионе было ограничено малыми давлениями гелия. В этом отношении ситуация вблизи второго уровня  $5d6p\,{}^6P_{7/2}$  значительно лучше. Однако, как показали дальнейшие исследования, порог возбуждения генерации в ионе при использовании этого уровня в качестве промежуточного значительно выше. Тем не менее удалось установить, что при настройке частоты накачки точно на частоту перехода селективность ДФИ значительно падает, так что вынужденное излучение в ионе при данной мощности накачки почти полностью исчезает. Вместе с тем интенсивность атомного

перехода с промежуточного уровня ( $\lambda = 545,8$  нм) максимальна (см. рис. 2).

Наблюдение за поведением интенсивности спонтанного излучения, осуществляемое перпендикулярно оси накачки, показало следующие закономерности. Максимумы спонтанного излучения как ионных, так атомных линий при настройке в резонанс с промежуточным уровнем совпадали. Отсутствие генерации в ионе, наблюдаемой в направлении накачки, в этих условиях можно объяснить падением селективности процесса ДФИ. Падение селективности ДФИ можно объяснить включением дополнительных паразитных каналов ионизации. Появление таких каналов обусловлено поглощением квантов накачки с атомных уровней, лежащих ниже промежуточного.

Заселение этих уровней происходит при вынужденных оптических переходах с промежуточного уровня атома. Так, при переходе с уровня [141, 9/2] ( $\lambda = 545,8$  нм) заселяется уровень  ${}^6D_{9/2}^0$ . Энергии кванта накачки уже недостаточно для того, чтобы поглощение с уровня  ${}^6D_{9/2}^0$  приводило к образованию резонансно возбужденного иона европия. Такое поглощение может привести только к паразитному заселению основного и метастабильных состояний иона и, как следствие, к срыву генерации на соответствующих  $r-m$ - и  $r-g$ -переходах.

Как видно из рис. 3, энергия возбуждения уровня [141, 9/2] всего на  $15\text{ см}^{-1}$  превышает энергию кванта четвертой гармоники Nd:YAG-лазера с  $\lambda_n = 266,1$  нм. Это обстоятельство указывает на возможность применения излучения Nd:YAG-лазера для исследования селективной ДФИ европия. Использование для накачки паров европия более мощного излучения с  $\lambda_n = 266,1$  нм позволило нам получить гораздо больше ионных линий сверхизлучения, чем при накачке второй гармоникой лазера на красителе. Результаты возбуждения резонансных состояний иона европия излучением четвертой гармоники Nd:YAG-лазера представлены на рис. 2, б.

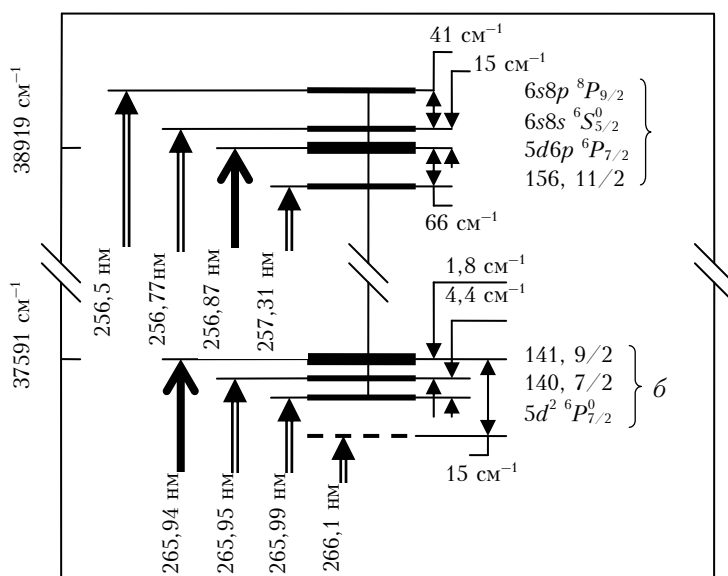


Рис. 3. Схема энергетических состояний атома европия (и соответствующих резонансных переходов), расположенных рядом с промежуточными уровнями  $5d6p\,{}^6P_{7/2}$  (а) и [141, 9/2] (б). Значение 266,1 нм соответствует длине волны четвертой гармоники Nd:YAG-лазера. Переходы с длинами волн 256,77 и 265,99 нм запрещены по четности

Видно, что вынужденное излучение возникает также на двух переходах в основное состояние иона европия  ${}^9S_4^0$  с длинами волн  $\lambda = 381,9$  нм ( ${}^9P_5-{}^9S_4^0$ ) и  $412,9$  нм ( ${}^9P_4-{}^9S_4^0$ ). Проведенные ранее исследования ДФИ европия и иттербия с использованием излучения мощного эксимерного KGF-лазера ( $\lambda_n = 248$  нм) показали, что, несмотря на наличие большого числа линий генерации в атоме, генерация в ионе в обоих случаях отсутствовала. Это различие можно объяснить наличием двухфотонного резонанса с двухэлектронным автоионизационным состоянием (АИС) европия для  $\lambda_n = 266,1$  нм и его отсутствием при исследовании ДФИ излучением Eu и Yb с  $\lambda_n = 248$  нм. За неимением данных о нечетных АИС, лежащих выше  ${}^{7,9}P_J$  первых резонансных уровней ионов европия, невозможно указать на конкретные двухэлектронные состояния, автоионизационный распад которых приводит к возбуждению этих резонансных уровней. Тем не менее, исходя из правил отбора для дипольных двухфотонных переходов, осуществляемых линейно поляризованным излучением, можно утверждать следующее. Эти АИС должны быть нечетными состояниями со значениями полного момента  $J = 11/2, 9/2, 7/2, 5/2$  и  $3/2$ .

### Заключение

Итак, в настоящей статье сообщается об обнаружении канала селективного двухфотонного возбуждения резонансных состояний иона европия  $6p^7P_J$  и  $6p^9P_J$  непосредственно с основного состояния атома  $6s^28S_{7/2}^0$ . Путем перестройки излучения накачки в диапазоне 240–270 нм показано, что необходимым условием эффективной двухфотонной ионизации является однофотонный квазирезонанс с промежуточным атомным уровнем, связанным с основным состоянием оптическим переходом. Другим важным условием эффективной ДФИ является, по всей видимости, двухфотонный резонанс с двухэлектронным АИС атома. Вынужденное излучение на переходах иона европия с резонансных  $6p^7P_J, 6p^9P_J$  на метастабильные состояния  $5d^7D_5^0, 5d^9D_6^0$  наблюдалось при мощности УФ-накачки 50–100 мкДж. При использовании для ДФИ более мощного Nd:YAG-лазера, кроме указанных выше линий сверхизлучения, была получена генерация на двух переходах в основное состояние иона европия  ${}^9S_4^0$  с длинами волн  $\lambda = 381,9$  нм ( ${}^9P_5-{}^9S_4^0$ ) и  $412,9$  нм ( ${}^9P_4-{}^9S_4^0$ ).

В эксперименте не наблюдалось интенсивных линий излучения, обусловленных переходами между

смещенными двухэлектронными состояниями атомного спектра. Этот результат указывает на то, что в условиях данного исследования скорость переноса энергии возбуждения между возбужденными ионными состояниями иона Eu<sup>+</sup> и двухэлектронными состояниями атома европия была незначительна. Соответственно механизм релаксации метастабильных состояний  ${}^{7,9}D_J^0$  иона европия, который постулировался в работе [10], в условиях настоящего эксперимента не наблюдался.

Детальное исследование механизма быстрой безызлучательной релаксации метастабильных состояний иона европия, основанное на использовании найденных каналов селективной ДФИ, является целью наших дальнейших исследований. При этом следует отметить, что если регистрацию слабого излучения ионов осуществлять в режиме счета фотонов, то потенциальные возможности такого метода изучения могут быть значительно расширены. И в этом случае можно изучать процессы создания инверсии населенности в широком диапазоне условий возбуждения.

1. Бохан П.А., Климкин В.М., Прокопьев В.Е. Газовый лазер на ионизированном европии // Письма в ЖЭТФ. 1973. Т. 18. Вып. 2. С. 80–82.
2. Климкин В.М., Прокопьев В.Е., Сокоиков В.Г. Экспериментальное исследование взаимосвязи ионных и атомных спектров Eu в Eu–He-смеси // Оптика атмосф. и океана. 1993. Т. 6. № 6. С. 28–634.
3. Петраш Г.Г. Столкновительные лазеры на атомных переходах // Квант. электрон. 2009. Т. 32. № 2. С. 111–124.
4. Климкин В.М., Прокопьев В.Е. Измерение эффективных времен жизни метастабильных состояний ионов в газоразрядной плазме // Оптика и спектроскопия. 1980. Т. 49. Вып. 6. С. 1081–1085.
5. Бохан П.А., Фадин А.В. Исследование процессов передачи возбуждения в ионе европия // Оптика и спектроскопия. 1982. Т. 52. Вып. 4. С. 626–629.
6. Green W.R., Falcone R.W. Inversion of the resonance line of Sr<sup>+</sup> produced by optically pumping Sr atoms // Opt. Lett. 1978. V. 2. N 5. P. 115–116.
7. Климкин В.М., Николаев В.Н., Сокоиков В.Г., Щеголов В.Б. Генерация в основное и метастабильные состояния Ba<sup>+</sup> при двухфотонной ионизации паров Ba излучением XeCl\*-лазера // Письма в ЖЭТФ. 1981. Т. 34. Вып. 3. С. 111–114.
8. Bokor J., Freeman R.R., Cooke W.E. Photo-autoionization pumped Ba ion laser // Phys. Rev. Lett. 1982. V. 48. N 18. P. 1242–1245.
9. White J.C., Bokor, Henderson D. Optically pumped atomic Thulium lasers // JEEE J. Quant. Electron. 1982. V. 18. N 3. P. 320–322.
10. Климкин В.М., Сокоиков В.Г. Бейтлеровские лазеры // Оптика атмосф. и океана. 1997. Т. 10. № 11. С. 1–10.

V.G. Sokovikov, V.M. Klimkin, V.E. Prokop'ev. Optical-pumping lasing of stimulated emission by transitions to ground and metastable states of Eu ion.

Experimental detection and study of a selective high-effective two-photon excitation channel of the Eu ion resonance states  $6p^7P_J$  and  $6p^9P_J$  from the ground state of the atom  $6s^28S_{7/2}^0$  by radiation of UV dye lasers ( $\lambda_1 = 265.8$  nm and  $\lambda_2 = 256.8$  nm) and the fourth harmonics of a Nd:YAG laser ( $\lambda_p = 266$  nm) in a mixture of Eu and He vapors are reported. The population inversion and stimulated emission by transitions from the resonance  ${}^{7,9}P_J$  levels to the ground  ${}^9S_4^0$  and metastable  ${}^{7,9}D_J^0$  Eu ion states were brought about when radiating this system at the above wavelengths.