

В.М. Климкин, В.Г. Сокоиков

БЕЙТЛЕРОВСКИЕ ЛАЗЕРЫ

Методом изоэлектронного совмещения показано, что плотность автоионизационных состояний элементов с *d*- и *f*-эквивалентными электронами может составлять 1÷10 состояний на 1 см⁻¹ энергии и для этих элементов можно ввести понятие автоионизационного континуума. В этих случаях характерные времена захвата резонансных электронов сравнимы с радиационными временами ($\tau \sim 10^{-8}$ с), поэтому процессы автоионизации и захват резонансных электронов в плазме приводят к инверсии в спектрах ионов и в спектрах бейтлеровских состояний. Приведены результаты экспериментов по селективной автоионизации и селективному взаимодействию возбужденных состояний ионов с автоионизационным континуумом.

На протяжении длительного времени (~100 лет) исследований физики газового разряда их основным объектом был разряд в инертных газах и парах ртути. Под воздействием этих исследований были сформулированы основные положения об условиях существования и влиянии на характеристики разрядов процессов, протекающих в плазме, и разработаны удовлетворительные модели разрядов [1–3].

Создание высокотемпературных газоразрядных трубок [4, 5] позволило приступить к исследованиям разрядов в парах широкого круга элементов таблицы Менделеева с малой упругостью паров. Имеющиеся в настоящее время специальные газоразрядные кюветы позволяют проводить исследования при температурах ~1500°С и давлениях до ~4÷5 атм [6]. Среди элементов, пары которых можно в настоящее время вводить в разряд, интерес представляют элементы с большим числом эквивалентных электронов – это элементы с достраивающимися *d*- и *f*-оболочками. Эти элементы отличаются от традиционных объектов исследований, например инертных газов, рядом свойств, которые должны быть учтены при анализе процессов, протекающих в плазме. К числу наиболее важных свойств следует отнести спектроскопическую сложность атомов и ионов этих элементов. Если за критерий сложности атома принять число состояний основной конфигурации, то рост сложности атома иллюстрируется зависимостями, представленными на рис. 1.

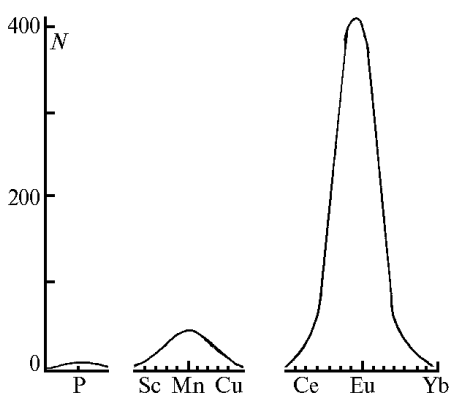


Рис. 1. Число состояний основной конфигурации для *p*-, *d*- и *f*-элементов

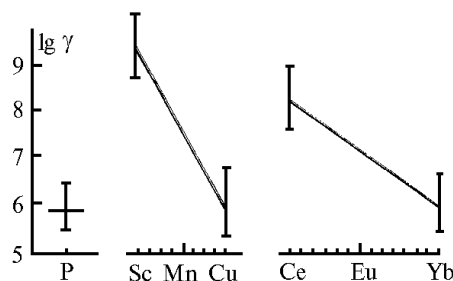


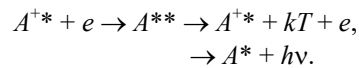
Рис. 2. Излучательные свойства *p*-, *d*- и *f*-элементов

Другим важным свойством рассматриваемых элементов является их повышенная излучательная способность. В качестве меры излучательной способности можно принять

$\gamma = \sum_i g_i A_i e^{-E_i/kT_e}$, где $g_i A_i$ – вероятность спектрального перехода с уровня i , имеющего энергию возбуждения E_i ; kT_e – температура электронов в разряде. Значения γ для ряда элементов приведены на рис. 2. При расчетах γ значение kT_e принималось равным $0,1U_i$, где U_i – потенциал ионизации атома. Сумма берется по нижним состояниям атома и иона (до $E_i \sim 0,8U_i$) для $gA > 10^6 \text{ с}^{-1}$.

Как видно из рис. 2, излучательная способность элементов с эквивалентными d - и f -электронами существенно превышает излучательную способность p -элементов. Указанные выше свойства d - и f -элементов требуют пересмотра роли отдельных процессов в плазме, в первую очередь излучательных и рекомбинационных. Нами будет показано, что для d - и f -элементов существует сильная связь между ионными и атомными спектрами и что эта связь проявляется в экспериментально наблюдаемых свойствах плазмы.

Рассмотрим реакцию



Здесь A^{+*} – возбужденное состояние иона; e – электрон; A^{**} – бейтлеровское состояние атома.

В процессе вышеприведенной реакции происходит захват электрона ионом и образовавшийся возбужденный атом попадает в автоионизационную область энергии (левая ветвь реакции). Далее эта реакция может идти по двум путям – рекомбинации, если процесс захвата стабилизирован, и автоионизации (правые ветви).

В связи с тем, что начальные стадии рекомбинационных и ионизационных процессов с участием возбужденных состояний ионов протекают в автоионизационной области энергий атома, примем во внимание следующие свойства автоионизации.

Автоионизационные состояния атома, лежащие в энергетической области выше первого потенциала ионизации, соответствуют возбуждению двух и более электронов. Часть этих состояний проявляется в спектрах излучения атома как обычные спектральные линии, другая часть соответствует сильно уширенным линиям, и, наконец, большинства из них в спектрах излучения не наблюдается. Эти три случая связаны с разной вероятностью безызлучательного распада высоковозбужденных состояний в процессе автоионизации, которая может достигать 10^{14} с^{-1} . Состояние атома, имеющего энергию выше первого потенциала возбуждения, с некоторой вероятностью является дискретным и с некоторой вероятностью его можно рассматривать как непрерывную последовательность, т.е. оно является суперпозицией дискретных и непрерывных состояний. Вероятность автоионизации такого состояния атома определяется близостью симметрии этого состояния к симметрии континуумов, которые следует рассматривать как продолжение соответствующих спектральных серий атома выше границы ионизации. Симметрия континуума – это симметрия атома, находящегося в одном из состояний спектральной серии для обычной одноэлектронной ионизации. Например, если симметрия континуумов соответствует сериям $nsn'p$, $nsn'd$, $nsn'f$ и т.д., то серии состояний двух возбужденных электронов $npn'd$, $npn'f$, лежащие выше границы ионизации, будут устойчивыми, а состояния типа $npn's$ – автоионизационными.

Если энергия дважды возбужденного состояния велика и превышает потенциалы возбужденных состояний ионов, то сформулированное выше правило симметрии позволяет предсказать состояние, в котором окажется ион после автоионизации атома. Например, если возбужденное состояние иона соответствует границе схождения серии $ndn'p$, то автоионизационные состояния $npn'd$ будут ионизоваться в возбужденное состояние иона. Рис. 3 и 4 иллюстрируют характерные закономерности автоионизации.

На рис. 3 состояние 1 серии $ndn's$ высоковозбужденного атома A^{**} является автоионизационным, т.к. имеется континуум серии $nsn'd$. Процесс его автоионизации приводит к образованию иона в основном состоянии. Состояния атома 2 и 3 – устойчивые, оптические переходы между ними образуют резкие спектральные линии. Оптический переход 1–3 либо уширен, либо не наблюдается.

На рис. 4 представлен более общий случай автоионизации, когда в ионном спектре имеются низколежащие возбужденные состояния A_1^{+*} , A_2^{+*} , A_3^{+*} ..., каждое из которых является ионизационным пределом спектральных серий K_1, \dots, K_6 . Если высоковозбужденное состояние атома A_3^{**} и континуумы K_5 и K_6 имеют общую симметрию, то состояние A_3^{**} автоионизи-

жать в диапазоне $10^{-7} \div 10^{-8}$ с. Напомним, что эти оценки соответствуют $T_e = 0,3$ эВ и $n_e = 10^{15}$ см $^{-3}$. Таким образом, на примере Cu как типичного представителя элементов с достраивающимися d -оболочками видим, что для этих элементов вероятность автоионизации равна $10^9 \div 10^{14}$ с $^{-1}$, вероятность захвата – $10^7 \div 10^8$ с $^{-1}$.

Для элементов с достраивающимися f -оболочками суммарная ширина автоионизационных резонансов еще больше и усредненное по распределению электронов сечение захвата может достигать $10^{-14} \div 10^{-15}$ см 2 . Таким образом, при плотностях электронов, соответствующих типичному случаю $n_e = 10^{15}$ см $^{-3}$, вероятность захвата $A_{зах} = 10^7 \div 10^8$ с $^{-1}$. В результате для элементов с достраивающимися d - и f -оболочками, имеющих развитые автоионизационные спектры, нижние ионные состояния одной симметрии в рассмотренных условиях ($n_e = 10^{15}$ см $^{-3}$) эффективно взаимодействуют между собой через автоионизационные состояния атомов в процессах захвата и автоионизации. Процесс захвата может быть застabilизирован столкновениями дважды возбужденных атомов с буферным газом и (или) излучением, в этом случае имеем рекомбинацию ионов через автоионизационные состояния атомов. Признаком такого механизма рекомбинации являются отсутствие рекомбинационного всплеска интенсивности излучения в спектре атома в послесвечении разряда на переходах основной конфигурации и, весьма вероятно, его наблюдение в смещенном спектре.

Если состояния иона не принадлежат континууму одной симметрии, то для их взаимодействия через автоионизацию необходимо осуществить в структуре автоионизационных состояний переход между состояниями разной симметрии, например посредством столкновений с буферным газом. В связи с большой плотностью возбужденных d - и f -состояний атомов в автоионизационной области энергий неупругие междуатомные столкновения могут протекать с большими сечениями и эти сечения будут зависеть от массы буферного газа. Переход с двумя стрелками на рис. 4 иллюстрирует такой процесс. Назовем два рассмотренных выше процесса процессами первого и второго типов.

Предложенная модель взаимодействия атомных и ионных спектров основывается на предположении высокой плотности автоионизационных состояний атомов d - и f -элементов в области энергии $4 \div 10$ эВ. Это предположение требует дополнительного обоснования.

Данные об автоионизационных спектрах d -элементов и редких земель ограничены. Однако оценки плотности автоионизационных состояний d - и f -элементов можно сделать на примере Eu – элемента с 7 эквивалентными электронами, исходя из следующих соображений. Часть автоионизационного спектра Eu соответствует возбуждению внутреннего $4f$ -электрона на оболочку $5d$. Ближайшими аналогами элемента с такой основной конфигурацией являются спектры тербия и гадолиния. Если совместить спектр гадолиния, имеющего основную конфигурацию $4f^7 5d 6s^2$, с первым возбужденным состоянием европия конфигурации $4f^6 5d 6s^2$, то состояния гадолиния, лежащие выше потенциала ионизации европия для конфигурации $4f^7 6s^2$, будут близко соответствовать автоионизационным состояниям европия. Рис. 5 поясняет эту процедуру изозлектронного совмещения.

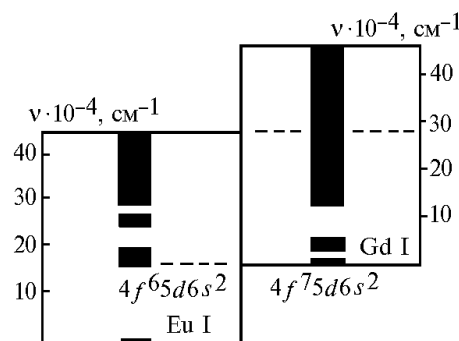


Рис. 5. Процедура совмещения спектров Eu и Gd для оценки числа автоионизационных состояний Eu

Анализ спектра Gd показывает [8], что в указанной области энергий >28000 см $^{-1}$ у гадолиния установлено более 500 уровней. Этот пример подтверждает наш вывод о высокой

плотности автоионизационных состояний РЗЭ. В частности, для гадолиния установлено [9], что плотность автоионизационных состояний составляет ~ 1 на 1 см^{-1} . Высокая плотность автоионизационных состояний и их уширение в результате автоионизации для f -элементов позволяют вести речь о существовании двух континуумов – ионизационного и автоионизационного.

Таким образом, мы показали, что разряды в парах d - и f -элементов могут явиться объектами создания лазеров нового класса, связанных с наличием у этих элементов автоионизационных континуумов. Назовем этот будущий класс лазеров бейтлеровскими и рассмотрим возможные схемы реализации таких лазеров.

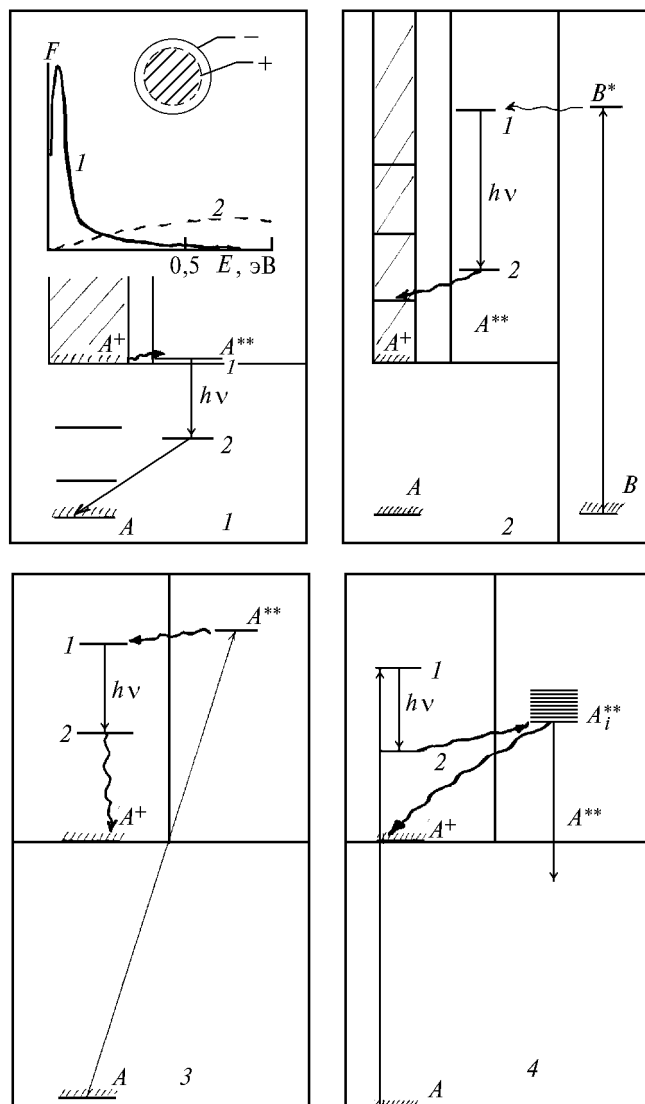


Рис. 6. Четыре схемы создания инверсии в бейтлеровских лазерах

На рис. 6 представлены четыре гипотетические схемы создания инверсий заселенности с участием процессов автоионизации и захвата. Две верхние схемы предусматривают инверсию в спектрах атомов и две нижние – в спектрах ионов.

Схема 1 основана на высокой плотности ионов в основном состоянии и особенностях распределения электронов по энергиям F в некоторых типах газовых разрядов. Например, в разработанном с участием одного из авторов в 70-х гг. в СФТИ коаксиальном полом катоде ширина распределения электронов по энергиям равна примерно $0,3 \div 0,5 \text{ эВ}$ [10, 11], в то время как в обычном положительном столбе разряда в тех же условиях эта величина составляет $2 \div 3 \text{ эВ}$.

иона наблюдались флуоресценция на переходах с уровня ${}^2P_{1/2, 3/2}$ и (при тщательно подобранных условиях и достаточной мощности второй гармоники лазера) генерация в метастабильные и основное состояния иона.

Наличие генерации является показателем высокой селективности автоионизации. Перестройкой лазера на красителе был записан контур автоионизационного уровня Ba, распад которого приводит к селективной ионизации иона в возбужденное состояние.

На рис. 8 представлена зависимость интенсивности флуоресценции на фиолетовой линии иона бария $\lambda = 455,35$ нм от длины волны лазера на красителе. Как видно из записи, ширина автоионизационного уровня близка к 160 см^{-1} . Следует отметить, что сверхсветимость в ионах Tm при распространении в их парах лазерного излучения наблюдалась другими авторами [14].

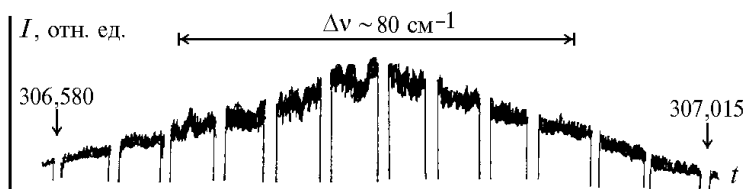


Рис. 8. Запись сигнала флуоресценции на $\lambda = 455,35$ нм BaII при шаговой перестройке длины волны лазера на красителе

Высокая вероятность захвата ионом электрона с образованием атома в автоионизационной области показывает, что этот процесс в ряде случаев может быть основным процессом релаксации возбужденных состояний ионов, в частности метастабильных состояний. Наиболее показательна ситуация в ионе европия (рис. 9).

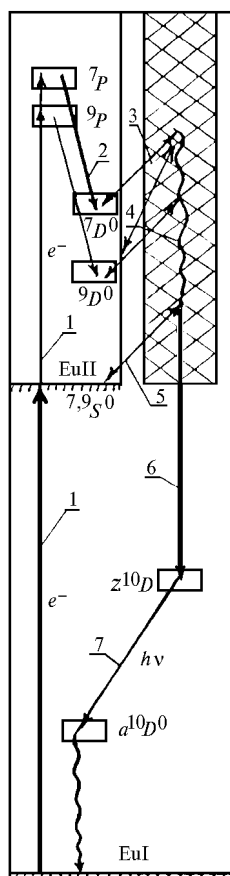


Рис. 9. Схема эксперимента по наблюдению процесса резонансного захвата электронов. Процессы 1 – возбуждение резонансного состояния иона; 2 – переброс части населенности состояний 7P на ${}^7D^0$ лазерным полем; 3, 5 – захват-ионизация; 4, 6 – стабилизация захвата

Рассматривая структуру возбужденных состояний иона европия с точки зрения модели взаимодействия ион–атом, проанализированной выше, отметим, что состояниям ${}^7D_j^0$ и ${}^9D_j^0$ Eu⁺ соответствуют континуумы близкой симметрии и, следовательно, эти состояния взаимодействуют между собой через автоионизационные состояния атома в процессе первого типа, т.е. без участия буферного газа (траектории 3–4). Состояния ${}^{7,9}S^0$, ${}^{7,9}P$ и ${}^{7,9}D^0$ имеют континуумы разной симметрии, и для передачи энергии между ними через автоионизационные состояния атома необходимо осуществить процесс второго типа, т.е. необходимым условием их взаимодействия являются большие давления легкого буферного газа. Естественно, что быстрая релаксация (траектории 3, 4, 5) метастабильных состояний ${}^7D_j^0$ должна наблюдаться как при низком, так и при высоком давлении буферного газа, причем с ростом давления времена жизни этих состояний должны сокращаться, так как при высоком давлении буферного газа в релаксации участвуют процессы обоих типов. Состояния ${}^9D_j^0$ релаксируют только при высоком давлении. Как известно, на переходах ${}^{7,9}P_j \rightarrow {}^7D_j^0$ наблюдается высокоэффективная квазинепрерывная генерация при высоком давлении буферного газа. Имеется шанс получить квазинепрерывную генерацию на видимых переходах ${}^{7,9}P_j \rightarrow {}^9D_j^0$ при дальнейшем повышении давления He и селекции ИК-линий.

Экспериментальные доказательства существования эффективных процессов захвата получены в [13]. Сущность этих экспериментов заключалась в периодическом воздействии на населенность состояния ${}^7D^0$ резонансным световым полем на переходе ${}^7P - {}^7D^0$ иона и наблюдении отклика на это воздействие в атомном спектре. Такой отклик был обнаружен в системе переходов $z^{10}D - a^{10}D^0$ (12 линий), принадлежащих конфигурации $4f^75d6p$. Этот отклик соответствует траектории движения частиц (3–6–7) на рис. 9.

1. Леб П. Основные процессы электрических разрядов в газах. М.: Гостехиздат, 1950. 630 с.
2. Грановский В. Л. Электрический ток в газе. М.: Наука, 1978. 541 с.
3. Френсис Г. Ионизационные явления в газах. М.: Атомиздат, 1964. 348 с.
4. Бохан П. А., Букова Е. С., Княшкина Г. С., Климкин В. М., Соломонов В. И. Техника исследований положительного столба газового разряда при высоких температурах // ПТЭ. N 1. 1974. С. 160–161.
5. Бохан П. А., Климкин В. М. Исследования свойств высокотемпературных газоразрядных трубок // ЖПС. 1973. Т. 9. N 3. С. 414–418.
6. Bokhan P. A., Zarevsky D. E. Investigations on the collisional He-EuII-laser with longitudinal gas discharge excitation of pressure up to 5 atm // Proc. SPIE. V. 210. P. 220–234.
7. Елаев В. Е. Измерение коэффициентов резонансного захвата электрона автоионизационным состоянием атома меди // Оптика атмосферы и океана. 1995. Т. 8. N 11. С. 1637–1641.
8. Meggers W. F., Corliss C. H., Scribner B. F. Table of spectral line intensities. Nat. Bur. Stand, Mangs. 1961. V. 32. Part 1.
9. Mishin V. J., Lombardi G. G., Cooper J. W., Keller D. E. Effects of very low electric fields on narrow autoionizing states in gadolinium // Physical Rev. A. V. 35. N 2. P. 665–667.
10. Климкин В. М., Мельченко В. С., Муравьев И. И., Солдатов А. Н., Янчарина А. М. Гелий-неоновый лазер на $\lambda = 1,15$ мкм в разряде с полым катодом // Материалы научно-технической конференции по электронной технике. 1970. Т. 2(18). С. 23.
11. Солдатов А. Н., Прилежаева А. А. Тонкая структура функции распределения электронов по энергиям // Известия вузов. Физика. 1971. N 11. С. 51–62.
12. Климкин В. М., Николаев В. Н., Соколов В. Г., Щеглов В. Б. Генерация в основном и метастабильное состояние Ba, возбуждаемая излучением Хе-Cl-лазера // Письма в ЖЭТФ. 1981. Т. 34. В. 3. С. 111–114.
13. Климкин В. М., Прокопьев В. Е., Соколов В. Г. Экспериментальное исследование взаимодействия ионного и атомного спектра Eu в He-Eu-разряде // Оптика атмосферы и океана. 1993. Т. 6. N 6. С. 371–374.
14. White J. C., Bokor J., and Henderson D. Optically Pumped Atomic Thulium Lasers // JEEE. V. QE-18. N 3. P. 320–322.

V. M. Klimkin, V. G. Sokovikov. **Beitler Lasers.**

It is shown by isoelectronic superposition method that the density of autoionization states of elements with d - and f -equivalent electrons may be from 1 to 10 states per 1 cm^{-1} of energy, so the notion «autoionization continuum» may be introduced for such elements. The characteristic times of the resonance electrons capturing are therewith comparable with radiation times ($\tau \sim 10^{-8}$ s), therefore autoionization processes and the capture of the resonance electrons result in inversion in the ions' spectra as well as in spectra of Beitler states. The experimental results on selective autoionization and selective interaction between the ions' excited states and the autoionization continuum are presented.