

Кинетика заселения и релаксации уровня $5d[3/2]_1$ при возбуждении чистого ксенона импульсным электронным пучком

И.А.Денежкин, П.П.Дьяченко

Измерена зависимость выхода спонтанного излучения от времени на переходах чистого ксенона $5d[3/2]_1 \rightarrow 6p[3/2]_1$ и $5d[3/2]_1 \rightarrow 6p[5/2]_2$ с длинами волн 2.03 и 1.73 мкм соответственно в диапазоне давлений 0.1–100 Тор при возбуждении импульсным электронным пучком наносекундной длительности. Показано, что основными механизмами заселения и релаксации уровня $5d[3/2]_1$ в этих условиях являются возбуждение и тушение его электронами рекомбинирующей плазмы. Плазмохимических процессов, ведущих к заселению этого уровня, в частности канала с образованием молекулярного иона Xe_2^+ , не обнаружено. Время жизни состояния $5d[3/2]_1$ атома Хе в диапазоне давлений 0.5–5 Тор составляет около 1 нс.

Ключевые слова: ксенон, электронный пучок, время жизни уровня.

1. Введение

Лазер на переходах $5d \rightarrow 6p$ атомарного ксенона при различных способах накачки смеси $Ne-Ar-Xe$ (электрический разряд, электронный пучок, осколки деления ядер) является эффективным и широко используемым устройством для получения излучения в ближней ИК области спектра (1.73–3.65 мкм). Известно [1], что смесь $Ne-Ar-Xe$ рассматривается в качестве перспективной лазерно-активной среды для создания мощных реакторно-лазерных систем, в том числе импульсного действия (оптического квантового усилителя с ядерной накачкой) [2]. Наибольший интерес представляют лазерные переходы атомарного ксенона $5d[3/2]_1 \rightarrow 6p[5/2]_2$, $5d[3/2]_1 \rightarrow 6p[3/2]_1$ и $5d[3/2]_1 \rightarrow 6p[1/2]_0$ с длинами волн 1.73, 2.03 и 2.65 мкм соответственно.

Экспериментальному и теоретическому исследованию генерационных характеристик такого лазера посвящено большое число работ. Однако данных фундаментального характера о кинетике и спектроскопических характеристиках соответствующих переходов пока недостаточно. Так, имеются две работы [3, 4], в которых получены расчетно-теоретические данные о вероятностях (силах осциллятора) переходов $5d \rightarrow 6p$ и одна экспериментальная работа [5], в которой измерено полное время жизни уровня $5d[3/2]_1$ в чистом ксеноне. Метод измерения основан на использовании лазерного импульса для возбуждения уровня $5d[3/2]_1$ и изучения его радиационной релаксации в ВУФ диапазоне по наблюдению резонансного перехода в основное состояние.

Вместе с тем данные о вероятности лазерного перехода, процессах заселения и времени жизни верхнего ра-

бочего уровня активной среды представляются весьма важными, т. к. они определяют сечение вынужденного излучения, эффективность и «накопительную способность» лазера, т. е. возможность его работы в схеме задающий генератор – усилитель.

Основным препятствием, сдерживавшим экспериментальные исследования в данном направлении, по-видимому, служило отсутствие достаточно чувствительных и быстродействующих ИК фотодетекторов, необходимых для изучения временной зависимости выхода люминесценции на лазерных переходах ксенона.

В последние годы в области разработки подобных детекторов имеется определенный прогресс. В частности, появились фотодиоды (ФД 24-03, ФД 36-03), позволяющие надеяться на успех при постановке таких экспериментов. Цель данной работы – проведение измерений зависимости выхода спонтанного излучения от времени на переходах $5d[3/2]_1 \rightarrow 6p[3/2]_1$ и $5d[3/2]_1 \rightarrow 6p[5/2]_2$ с длинами волн 2.03 и 1.73 мкм соответственно при возбуждении чистого ксенона электронным пучком малой длительности и получении на их основе данных о кинетике заселения и релаксации уровня $5d[3/2]_1$ атома Хе.

2. Экспериментальный метод

Схема экспериментальной установки показана на рис.1. Для возбуждения среды использовался импульсный электронный ускоритель Радан-220 [6] с энергией электронов ~ 150 кэВ, шириной импульса на половине высоты ~ 2 нс и током с амплитудой ~ 500 А. Ускоритель работал в режиме одиночных пусков. Кювета представляла собой кварцевую трубку с внутренним диаметром 24 мм и длиной 150 мм и имела выходное оптическое окно, изготовленное из $ВаF_2$. На внутреннюю поверхность трубки было нанесено зеркальное алюминиевое покрытие. С помощью форвакуумного насоса через ловушку с жидким азотом кювета откачивалась до давления 5×10^{-3} Тор и наполнялась исследуемой средой.

Для уменьшения влияния электромагнитной помехи, создаваемой ускорителем, на работу регистрирующей

И.А.Денежкин, П.П.Дьяченко. ФГУП «ГНЦ РФ – Физико-энергетический институт им. А.И.Лейпунского», Россия, Калужская обл., 249033 Обнинск, пл. Бондаренко, 1; e-mail: denezhkin@ipre.ru, dpp@ipre.ru

Поступила в редакцию 2 июня 2008 г., после доработки – 10 сентября 2008 г.

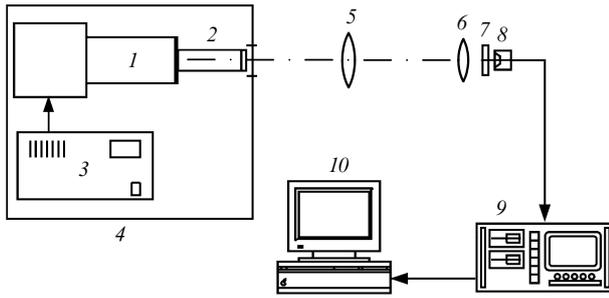


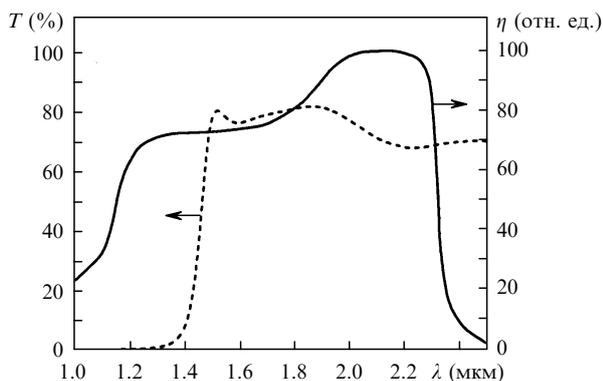
Рис.1. Схема экспериментальной установки:

1 – электронный ускоритель Радан-220; 2 – кювета; 3 – блок питания ускорителя; 4 – короб из магнитно-мягкого железа; 5 – линза (фокусное расстояние $F = 170$ мм, $\varnothing 80$ мм); 6 – линза ($F = 40$ мм, $\varnothing 40$ мм); 7 – светофильтр ИКС-1500; 8 – фотодиод ФД 24-03; 9 – запоминающий осциллограф Tektronix TDS 1012; 10 – персональный компьютер.

аппаратуры использовались два приема. Во-первых, блок питания и ускоритель с закрепленной на нем кюветой помещались в короб из магнитно-мягкого железа. В одной из стенок короба напротив окна кюветы имелось отверстие диаметром 30 мм для вывода оптического излучения. Во-вторых, детектор излучения был удален от ускорителя на расстояние ~ 1 м. При этом для транспортировки света от кюветы к детектору применялась специальная оптическая система. Изображение выходного окна кюветы с помощью длиннофокусной кварцевой линзы с апертурой $\varnothing 80$ мм переносилось на расстояние ~ 80 см и затем короткофокусной кварцевой линзой через светофильтр ИКС-1500 проецировалось на входной зрачок детектора.

В качестве детектора использовался фотодиод ФД 24-03 с диаметрами входного зрачка и фоточувствительной площадки 7 и 0.3 мм соответственно. Детектор работал в фотовольтаическом режиме (нагрузка 50 Ом). Сигнал с детектора, соответствующий импульсу люминесценции (выходу спонтанного излучения), подавался на запоминающий осциллограф Tektronix TDS 1012, соединенный с персональным компьютером.

Перед проведением основных измерений был выполнен ряд вспомогательных и контрольных экспериментов. Во-первых, была изучена спектральная функция отклика регистрирующей системы. На рис.2 показана относительная спектральная чувствительность фотодиода ФД 24-03 [7] и зависимость коэффициента пропускания светофильтра ИКС-1500 от длины волны, измеренная на спектрофотометре Cary-500. Видно, что система чувствительна к

Рис.2. Зависимости чувствительности η фотодиода ФД 24-03 и пропускания T светофильтра ИКС-1500 от длины волны λ .

излучению в диапазоне длин волн 1.3–2.5 мкм. За пределами этого диапазона эффективность регистрации фотонов близка к нулю. Вспомогательные измерения с помощью монохроматора МДР-23 (дифракционная решетка 300 штрих./мм, детектор – фотодиод ФД 24-03) показали, что при возбуждении чистого ксенона электронным пучком, кроме линий с длинами волн 2.03 и 1.73 мкм, соответствующих переходам $5d[3/2]_1 \rightarrow 6p[3/2]_1$ и $5d[3/2]_1 \rightarrow 6p[5/2]_2$ атомарного ксенона, других линий в данном диапазоне нет. При этом интенсивность первой линии примерно в десять раз больше интенсивности второй. Регистрация суммарного излучения с указанными длинами волн позволяет несколько увеличить (примерно на 10 %) эффективную светосилу спектрометра. Результаты исследования процессов возбуждения и релаксации уровня $5d[3/2]_1$ при этом исказиться не могут, т.к. для обсуждаемых переходов данный уровень является общим.

Во-вторых, с помощью ослабляющих светофильтров была проверена линейность спектрометра. В качестве источника света использовалась рабочая кювета с чистым ксеноном при давлении 20 Тор, возбуждаемым электронным пучком. Стабильность работы ускорителя контролировалась с помощью поверхностно-барьерного кремниевоего фотодетектора [8], регистрирующего излучение в видимой области спектра. Было установлено, что для реализованного в эксперименте диапазона амплитуд импульсов 0.5–30 мВ спектрометр является линейным в пределах $\pm 10\%$.

Далее была измерена временная функция отклика спектрометра. Для этого одиночный импульс генератора Г5-59 длительностью 2 нс (форма импульса контролировалась осциллографом С1-75) подавался на детектор и регистрировался осциллографом Tektronix TDS 1012, работающим в том же режиме, что и при регистрации излучения ксенона. Ширина импульса на полувысоте при этом оказалась равной 4 ± 0.5 нс. Это соответствует постоянной времени системы $RC \sim 3$ нс, что при нагрузке 50 Ом согласуется с паспортными значениями емкости фотодиода ФД 24-03 и соединительного кабеля, равными примерно 40 и 20 пФ соответственно.

Было установлено также, что возможное наличие тушащих примесей в исследуемой среде не влияет на результаты эксперимента. С этой целью проводилось сравнение формы (амплитуды и полуширины) импульсов люминесценции при различных экспериментальных условиях. В частности, при использовании баллонов со спектрометрически чистым ксеноном, полученным от завода-изготовителя в разное время, рабочих кювет, изготовленных из различного материала (кварц, нержавеющая сталь), а также при различной выдержке среды в кювете после ее заполнения (до 16 ч). Заметных различий (выходящих за пределы экспериментальных погрешностей) в форме импульса обнаружено не было. Тем не менее в процессе измерений при различных давлениях ксенона каждый раз проводилось вакуумирование кюветы и ее заполнение свежим газом.

Более подробное описание методики эксперимента можно найти в работе [9].

3. Результаты эксперимента и их обсуждение

Результаты эксперимента приведены на рис.3–5. Осцилляции, наблюдаемые на заднем фронте импульсов люминесценции, представленных на рис.3, связаны с элек-

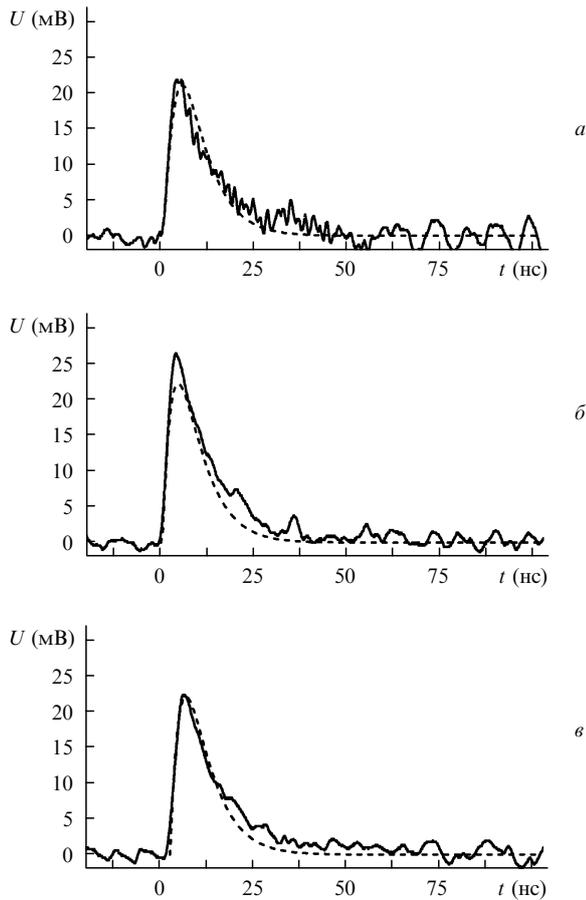


Рис.3. Импульсы люминесценции возбуждаемого электронным пучком чистого ксенона при его давлении $p = 1$ (а), 16 (б) и 70 Тор (в). Сплошные кривые – эксперимент, штриховые – расчет.

ромагнитной помехой, создаваемой ускорителем. Погрешности, показанные на рис.4 и 5, получены из разброса результатов серий измерений и характеризуют в основном воспроизводимость параметров импульса ускорителя электронов в различных пусках.

Форма импульса люминесценции слабо зависит от давления ксенона и, например, при давлении 1 Тор (см. рис.3,а) времена нарастания и спада импульса составляют около 3 и 10 нс соответственно. Отсюда сразу, не прибегая к детальному анализу формы импульса, можно сделать вывод о том, что время жизни уровня $5d[3/2]_1$ не превышает 10 нс. Это примерно в десять раз меньше соответствующего значения, полученного в работе [5] при возбуждении уровня $5d[3/2]_1$ лазерным импульсом.

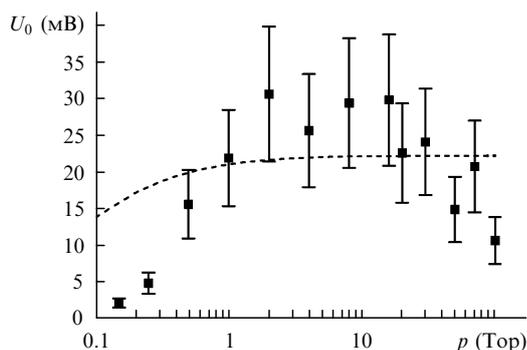


Рис.4. Зависимости амплитуды импульса люминесценции U_0 от давления ксенона p . Точки – эксперимент, штриховая кривая – расчет.

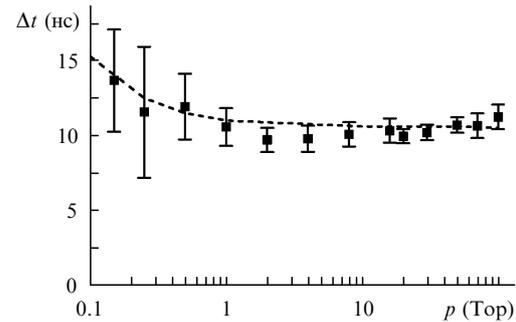


Рис.5. Зависимости ширины импульса люминесценции на полувысоте Δt от давления ксенона p . Точки – эксперимент, штриховая кривая – расчет.

Столь существенное различие времен жизни уровня $5d[3/2]_1$ в этих двух случаях может быть объяснено тем, что при возбуждении ксенона электронным пучком, в отличие от возбуждения лазерным импульсом, происходит интенсивное тушение этого уровня электронами рекомбинирующей плазмы. Это подтверждает выдвинутую ранее авторами работы [10] гипотезу об электронном перемешивании лазерных уровней для объяснения экспериментально наблюдаемой задержки импульса генерации Ar–Xe-лазера при накачке электронным пучком.

Вместе с тем несколько неожиданными, на первый взгляд, являются представленные на рис.4 и 5 зависимости амплитуды и ширины на полувысоте импульса люминесценции от давления газа. В частности, тот факт, что при повышении давления ксенона почти в 100 раз эти параметры практически не меняются. Однако если учесть конечную длительность импульса ускорителя и временное разрешение спектрометра, то наблюдаемое поведение экспериментальных кривых можно понять в рамках следующей довольно простой модели.

Известно, что населенность $N(t)$ уровня $5d[3/2]_1$ в процессе его возбуждения и релаксации можно описать с помощью уравнения

$$\frac{dN(t)}{dt} = R(t) - \frac{N(t)}{\tau}, \quad (1)$$

где $R(t)$ и τ – скорость возбуждения и время жизни этого уровня соответственно. Для $R(t)$ и регистрируемого осциллографом импульса напряжения $U(t)$, пропорционального выходу спонтанного излучения $Q(t)$, можно записать

$$R(t) = A_p \exp\left(-\frac{t}{\tau_p}\right), \quad (2)$$

$$U(t) = kQ(t) = k \frac{N(t)}{\tau_{\text{rad}}}, \quad (3)$$

где A_p и τ_p – скорость накачки в начальный момент времени и постоянная времени ее релаксации; $\tau_{\text{rad}}^{-1} = \tau_1^{-1} + \tau_2^{-1}$; τ_1, τ_2 – радиационные постоянные времени для переходов $5d[3/2]_1 \rightarrow 6p[5/2]_2$ ($\lambda = 1.73$ мкм) и $5d[3/2]_1 \rightarrow 6p[3/2]_1$ ($\lambda = 2.03$ мкм) соответственно; k – калибровочная константа, связывающая показания осциллографа с выходом спонтанного излучения. Подставив выражения для $R(t)$ и $U(t)$ в уравнение (1), получим

$$\frac{dU(t)}{dt} = \frac{k}{\tau_{\text{rad}}} A_p \exp\left(-\frac{t}{\tau_p}\right) - \frac{U(t)}{\tau}. \quad (4)$$

Решение этого уравнения с учетом длительности импульса ускорителя τ_{acc} и временного разрешения спектрометра τ_0 имеет вид

$$U(t) = k \frac{A_p}{\tau_{\text{rad}}} \frac{\tau_p}{\tau_p - \tau_{\text{acc}}} \left\{ \frac{\tau \tau_p}{\tau_p - \tau} \left[\frac{\tau_p}{\tau_p - \tau_0} (e^{-t/\tau_p} - e^{-t/\tau_0}) - \frac{\tau}{\tau - \tau_0} (e^{-t/\tau} - e^{-t/\tau_0}) \right] - \frac{\tau \tau_{\text{acc}}}{\tau_{\text{acc}} - \tau} \left[\frac{\tau_{\text{acc}}}{\tau_{\text{acc}} - \tau_0} (e^{-t/\tau_{\text{acc}}} - e^{-t/\tau_0}) - \frac{\tau}{\tau - \tau_0} (e^{-t/\tau} - e^{-t/\tau_0}) \right] \right\}. \quad (5)$$

На рис.3–5 штриховыми кривыми показаны результаты расчета соответствующих величин с помощью выражения (5) при следующих оптимальных параметрах: $\tau_{\text{acc}} = 3$ нс, $\tau_0 = 6$ нс, $\tau_p^{-1} = 4 \times 10^9 p$, $\tau^{-1} = 0.9 \times 10^9 p^{1/2}$, $A_p = 1.1 \times 10^4 p^{3/2}$, где τ_p и τ берутся в секундах, A_p – в $\text{см}^3 \cdot \text{с}^{-1}$, а давление ксенона p – в торрах. Видно, что в целом результаты расчета удовлетворительно согласуются с экспериментальными данными. Исключение составляют области очень малых ($p < 0.5$ Торр) и больших ($p > 70$ Торр) давлений на рис.4. Наблюдаемые различия можно объяснить тем, что в данной модели не учитываются резонансный характер состояния $5d[3/2]_1$ атома Хе, проявляющийся в области низких давлений, и эффект насыщения энерговыклада электронов пучка в среду при больших давлениях ксенона.

Следует отметить, что оптимальным временным разрешением спектрометра оказалось $\tau_0 = 6$ нс, а не $\tau_0 = 3$ нс, как было получено в контрольном эксперименте с использованием генератора. Это связано с тем, что в данном эксперименте не учитывалось время накопления заряда в фотодиоде, которое в нашем случае, по-видимому, составляет ~ 5 нс.

Степенная зависимость параметров τ и A_p от давления ксенона объясняется тем, что в рекомбинирующей плазме плотность электронов растет с ростом давления как $p^{1/2}$ [10].

Таким образом, можно сказать, что основными механизмами заселения и релаксации уровня $5d[3/2]_1$ при возбуждении чистого ксенона электронным пучком являются возбуждение и тушение этого уровня электронами рекомбинирующей плазмы, причем характерные постоянные времени этих процессов очень малы. Так, при давлениях ксенона в несколько торр, представляющих интерес для работы лазера, время жизни уровня $5d[3/2]_1$, по крайней мере в интервале времени, сравнимом с длительностью импульса накачки, практически полностью определяется электронным тушением и составляет ~ 1 нс.

Вместе с тем можно показать, что плотность электронов, необходимая для столь интенсивного тушения, при константе скорости, например, $2 \times 10^{-7} \text{ см}^3 \cdot \text{с}^{-1}$ [10], значительно превышает оценку соответствующей величины, основанную на расчете потерь энергии электронного пучка в ксеноне. Поскольку в данном случае эти потери невелики, можно предположить, что одним из источников существенного повышения плотности электронов в условиях нашего эксперимента служит вторичная электронная эмиссия со стенок кюветы.

Следует отметить также, что зарегистрированные импульсы люминесценции (рис.3) хорошо описываются предложенной моделью и не содержат долгоживущих

компонент. Это означает, что при возбуждении чистого ксенона электронным пучком не проявляются плазмохимические процессы заселения уровня $5d[3/2]_1$. В частности, отсутствует канал заселения, идущего через образование молекулярного иона Xe_2^+ . Этот результат представляет интерес, т.к. в имеющихся работах, связанных с исследованием кинетики процессов в чистом ксеноне [11, 12], реакция диссоциативной рекомбинации иона Xe_2^+ рассматривается в качестве основного канала накачки ксенонового лазера.

4. Заключение

Таким образом, в настоящей работе измерена зависимость от времени выхода спонтанного излучения на переходах $5d[3/2]_1 \rightarrow 6p[3/2]_1$ и $5d[3/2]_1 \rightarrow 6p[5/2]_2$ с длинами волн 2.03 и 1.73 мкм соответственно при возбуждении чистого ксенона в широком диапазоне давлений импульсным электронным пучком малой длительности. Анализ приведенных данных показал, что основными механизмами заселения и релаксации уровня $5d[3/2]_1$ являются возбуждение и тушение его электронами рекомбинирующей плазмы. Характерные постоянные времени этих процессов очень малы и в исследованном диапазоне давлений ксенона не превышают 2 нс. Так, при давлениях в несколько торр, представляющих интерес для работы Аг–Хе-лазера, время жизни уровня $5d[3/2]_1$, по крайней мере в интервале времени, сравнимом с длительностью электронного импульса, практически полностью определяется электронным тушением и составляет ~ 1 нс.

При возбуждении чистого ксенона электронным пучком не обнаружено проявления плазмохимических процессов заселения уровня $5d[3/2]_1$. В частности, отсутствует канал заселения, идущего через образование молекулярного иона Xe_2^+ , рассматриваемый в качестве одного из важных каналов накачки ксенонового лазера.

Авторы считают своим долгом выразить признательность В.П.Семенову за помощь в работе и полезные обсуждения.

Работа выполнена в рамках контракта с Росатомом № Н.4д.47.03.08.123.

1. Карелин А.В., Синянский А.А., Яковленко С.И. *Квантовая электроника*, **24**, 387 (1997).
2. Гулевич А.В., Дьяченко П.П., Зродников А.В., Кононов В.Н. *Атомная энергия*, **80**, 361 (1996).
3. Aymar M., Coulombe V. *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, **21**, 537 (1978).
4. Dasgupta A., Apruzese J.P., Zatsarinny O., Bartschat K., Fischer C.F. *Phys. Rev. A*, **74**, 012509 (2006).
5. Alekseev V.A., Setser D.W. *J. Phys. Chem. A*, **103**, 8396 (1999).
6. Бакшт Е.Х., Костыря И.Д., Липатов Е.И., Ломаев М.И., Рыбка Д.В., Тарасенко В.Ф. *ЖТФ*, **77**, 98 (2007).
7. Денежкин И.А., Дьяченко П.П. *Препринт ФЭИ-3057* (Обнинск, 2005).
8. Лapidус В.И., Дьяченко П.П., Серегина Е.А., Семенова Н.Н. *ПТЭ*, № 3, 108 (2001).
9. Денежкин И.А., Дьяченко П.П. *Препринт ФЭИ-3124* (Обнинск, 2008).
10. Peters P.J., Yun Fu Lan, Ohwa M., Kushner M.J. *IEEE J. Quantum Electron.*, **26**, 1964 (1990).
11. Карелин А.В., Симакова О.В. *Квантовая электроника*, **28**, 121 (1999).
12. Dudin A.Yu., Semenova L.V., Ustinovskii N.N., Kholin I.V., Chugunov A.Yu. *J. Sov. Las. Res.*, **13**, 374 (1992).