

Исследование механизма генерации столкновительного лазера на самоограниченном переходе $2^1P_1^0 - 2^1S_0$ в атоме гелия

Е.В.Бельская, П.А.Бохан, Д.Э.Закревский, М.А.Лаврухин

В режимах одиночных и сдвоенных импульсов исследована генерация на самоограниченном переходе в атоме гелия $2^1P_1^0 - 2^1S_0$ ($\lambda = 2.058$ мкм) при электронно-пучковом возбуждении в чистом гелии и в его смесях с H_2 , N_2 , O_2 , CO_2 , H_2O , NH_3 и N_2O . В чистом гелии максимальная длительность импульсов генерации составила ~ 50 нс, что совпадает с расчетным значением. Восстановление генерации во втором импульсе начинается при временном сдвиге между импульсами более 1.25 мкс. Введение CO_2 , N_2O , NH_3 и H_2O увеличивает скорость релаксации населенностей метастабильного состояния $He(2^1S_0)$ и уменьшает время задержки восстановления генерации во втором импульсе вплоть до слияния импульсов при добавлении H_2O . При длительности импульса возбуждения 1.2 мкс по основанию в смесях гелия с NH_3 и H_2O получен импульс генерации длительностью ~ 0.8 мкс, что свидетельствует о реализации столкновительного квазинепрерывного режима. Измерены константы девозбуждения уровня $He(2^1S_0)$ молекулярными примесями. Обсуждается механизм столкновительной генерации.

Ключевые слова: столкновительная генерация, гелиевый лазер, константы девозбуждения.

1. Введение

Расселение нижнего рабочего уровня лазерного перехода при соударениях с тяжелыми частицами активно используется для получения инверсной населенности в атомах, молекулах и их ионах и привело к созданию наиболее мощных высокоэффективных лазеров (на молекулах CO_2 , CO , атоме иода и др.). Предложение об использовании столкновительного девозбуждения рабочих состояний для создания среды с отрицательным поглощением было впервые сформулировано в работе [1] еще до запуска первого лазера. Позднее Беннет [2] и Гоулд [3] конкретизировали требования к активным средам лазеров (иногда называемых «столкновительными»), принцип работы которых основан на быстрой релаксации в системе групп близкорасположенных верхних и нижних уровней при энергетическом расстоянии в группе $\Delta E \leq k_B T_g$ (k_B – постоянная Больцмана, T_g – температура рабочей среды).

Как отмечалось в работе [4], примером удачного воплощения предложения Гоулда по созданию столкновительного лазера является лазер на смеси $CO_2 - N_2 - He$. Однако попытки реализации таких лазеров на атомных или ионных рабочих средах при традиционных методах возбуждения (газовый разряд или электронный пучок (ЭП)) оказались в основном безуспешными [5]. При оптическом возбуждении [6] или смешении с предварительным возбужденным носителем энергии [7] инверсия и генерация достигаются, например, в атомах рубидия и цезия [6] или в атоме иода [7]. И хотя в этих атомах релаксация и передача энергии при $\Delta E \leq k_B T_g$ осуществляются только

в ансамбле верхних уровней, тем не менее на их основе созданы и продолжают развиваться одни из наиболее мощных и перспективных лазеров [8, 9]. Другой успешной тенденцией развития лазеров со столкновительным девозбуждением является поиск и реализация систем с быстрой релаксацией нижних рабочих состояний в единичном акте соударения при $\Delta E \gg k_B T_g$. В частности, в смеси $He - Zn - Eu$ на переходе $Eu^+(z^7P_4 - a^7D_3^0)$ с $\lambda = 1.002$ мкм достигнута максимальная для газовых лазеров энергия излучения на единицу массы вещества [10].

Среди большого разнообразия столкновительных процессов, ведущих к быстрой релаксации населенностей атомных состояний при $\Delta E \gg k_B T_g$ и получению генерации [11–23], только пеннинг-эффект для атомов и квазирезонансная перезарядка для ионов имеют достаточно общий характер. Недавно в работе [24] сообщалось о реализации столкновительной генерации в лазере на переходе $He(2^1P_1^0 - 2^1S_0)$ с $\lambda = 2.058$ мкм при одновременном использовании других универсальных механизмов тушения – соударений с молекулами и медленными электронами. Привлекательной особенностью этого лазера является возможность генерации на переходе с резонансного состояния (РС) на метастабильное (МС), предложенной в [25] и реализованной для атомов Ba [22, 26], Eu [10, 22], Ca и Sr [12, 13], Pb [22] и ионов Ca^+ , Eu^+ и Sr^+ [21]. В настоящей работе сообщается о результатах детального исследования механизма генерации столкновительного гелиевого лазера.

2. Аппаратура и методика измерений

Исследование характеристик генерации проводилось с использованием лазерной кюветы и генератора накачки, описанных в [24, 27]. Для возбуждения генерации на самоограниченном переходе использовалась накачка радиальным ЭП, генерируемым открытым разрядом (ОР) [28] в режимах сдвоенных импульсов длительностью по высоте 25 нс в кювете диаметром 3.1 см с длиной 12 см.

Е.В.Бельская, П.А.Бохан, Д.Э.Закревский, М.А.Лаврухин. Институт физики полупроводников им. А.В.Ржанова СО РАН, Россия, 630090 Новосибирск, просп. Акад. Лаврентьева, 13; e-mail: zakrdm@isp.nsc.ru

Поступила в редакцию 6 июля 2011 г., после доработки – 22 сентября 2011 г.

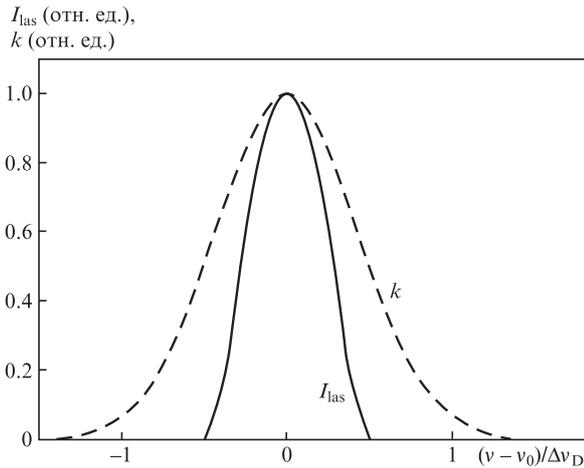


Рис.1. Интенсивность лазерного излучения I_{las} и коэффициент поглощения k для доплеровски уширенной линии $\text{He}(2^1\text{S}_0-2^1\text{P}_1^0)$ в зависимости от отстройки частоты от центра линии ($\lambda = 2.058$ мкм, Δv_D – доплеровская ширина линии на полувысоте).

Амплитуда тока ЭП достигала 2.5 кА, рабочее напряжение в ОР не превышало 7 кВ. Свойства столкновительной генерации исследовались также при накачке одиночными импульсами длительностью до 1.2 мкс, генерируемыми с помощью искусственной линии с волновым сопротивлением 4 Ом.

Скорость релаксации МС $\text{He}(2^1\text{S}_0)$ измерялась путем регистрации поглощения в тестовой кювете длиной 9 см с диаметром 5 см, также накачиваемой радиальным ЭП длительностью ~ 15 нс, генерируемым в ОР. В качестве пробного использовалось излучение лазера на самоограниченном переходе $\text{He}(2^1\text{P}_1^0-2^1\text{S}_0)$ с $\lambda = 2.058$ мкм, накачиваемого радиальным ЭП. Осевая область лазерного пучка выделялась диафрагмой диаметром 0.3 см, и излучение направлялось по оси тестовой кюветы. Нерезонансные потери в резонаторе лазера $\beta l = 0.34$ (β – приведенный коэффициент нерезонансных потерь, l – длина активной среды лазера), а накачка осуществлялась таким образом, чтобы усиление в центре доплеровского контура $\alpha l = 0.69$ (α – коэффициент усиления). Контур линии генерации для этого случая, рассчитанный согласно работе [29], описывается выражением $I_{\text{las}}(v) = \alpha(v)I_s[1 - \sqrt{\beta/\alpha(v)}]^2$ ($I_s = A_{\text{tm}}h\nu_0/[2\sigma(v)]$ – интенсивность насыщения в центре линии на частоте $\nu_0 = c/\lambda$, A_{tm} – вероятность перехода $\text{He}(2^1\text{P}_1^0-2^1\text{S}_0)$; h – постоянная Планка, $\sigma(v)$ – сечение поглощения при доплеровском уширении) и представлен на рис.1. Там же показан доплеровский контур линии поглощения в тестовой кювете на переходе $\text{He}(2^1\text{S}_0-2^1\text{P}_1^0)$ при комнатной температуре.

При использовании монохроматического пробного излучения на частоте ν_0 , соответствующей центру линии поглощения, для измерения коэффициента поглощения $k(\nu_0)$ определяется отношение энергий w_{out} и w_{in} пробного излучения, выходящего из кюветы и входящего в нее соответственно, $w_{\text{out}}/w_{\text{in}} = \exp(-ks)$, где s – длина поглощающей области. Поскольку поглощение излучения происходит на переходе $\text{He}(2^1\text{S}_0-2^1\text{P}_1^0)$, то в случае монохроматического пробного излучения с $\lambda = 2.058$ мкм коэффициент $k = k(\nu_0) \propto n_m$, где n_m – населенность МС $\text{He}(2^1\text{S}_0)$. С учетом временной зависимости $n_m = n_m^0 \exp(-At)$ скорость тушения A определяется из выражения

$$At = -\ln k + b = -\ln[-\ln(w_{\text{out}}/w_{\text{in}})] + c, \quad (1)$$

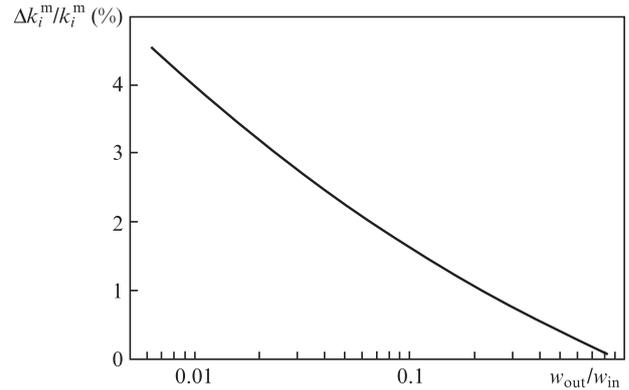


Рис.2. Погрешность $\Delta k_i^m/k_i^m$ измерения константы девозбуждения в зависимости от отношения энергий $w_{\text{out}}/w_{\text{in}}$ прошедшего через тестовую кювету и входящего в нее пробного излучения.

где b и c – константы. По скорости девозбуждения МС определяется константа процесса: $k_i^m = An_i$, где n_i – концентрация i -го реагента (электроны и различные молекулы).

В том случае, когда частота пробного излучения $\nu \neq \nu_0$, коэффициент поглощения уменьшается и, следовательно, $w_{\text{out}}/w_{\text{in}}$ и населенность n_m определяются с погрешностью $\Delta n_m/n_m = [k(\nu_0) - k(\nu)]/k(\nu_0)$. Если пробное излучение немонохроматично, то

$$w_{\text{out}}/w_{\text{in}} = \int I_{\text{las}}(v) \exp[-k(v)s] dv / \int I_{\text{las}}(v) dv = \exp(-k_{\text{av}}s)$$

(k_{av} – результирующий коэффициент поглощения) и полученный коэффициент k_{av} отличается от $k(\nu_0)$. Погрешность измерения константы девозбуждения $\Delta k_i^m/k_i^m$, обусловленная конечной шириной спектра пробного излучения, для различных значений коэффициента поглощения $k(\nu_0)$ вычислялась следующим образом:

$$\frac{\Delta k_i^m}{k_i^m} = 1 - \frac{\ln(k_{\text{av}})}{\ln[k(\nu_0)]} = 1 - \frac{\ln[-\ln(w_{\text{out}}/w_{\text{in}})]}{\ln\{-\ln[\exp(-k(\nu_0)s)]\}}.$$

Результаты вычисления для случая, когда в качестве пробного используется излучение лазера с распределением интенсивности по частоте, показанным на рис.1, приведены на рис.2. Видно, что погрешность возрастает при увеличении $k(\nu_0) \propto n_m$ (или уменьшении отношения $w_{\text{out}}/w_{\text{in}}$). Например, чтобы определить константу девозбуждения $k_i(\nu)$ с погрешностью $\Delta k_i^m/k_i^m \approx 2\%$, отношение $w_{\text{out}}/w_{\text{in}}$ должно быть больше 0.06.

Параметры импульса излучения лазера измерялись приемником из InSb (PD24-03) с временным разрешением 4 нс и четырехканальным осциллографом TDS-2024В с полосой пропускания 200 МГц. Спонтанное излучение из рабочих кювет исследовалось с помощью монохроматора и фотоумножителя ФЭУ-106 с временным разрешением 3 нс.

3. Характеристики генерации в режиме сдвоенных импульсов

Измерение параметров генерации во втором импульсе накачки, т.е. зависимостей w_2/w_1 от времени задержки между импульсами Δt , где w_2 и w_1 – энергии второго и первого импульсов соответственно, проводилось как в чистом He , так и в его смесях с H_2 , N_2 , O_2 , CO_2 , H_2O , NH_3 и N_2O . Примером, характеризующим восстановление генерации в чистом He во втором импульсе, является кривая I на

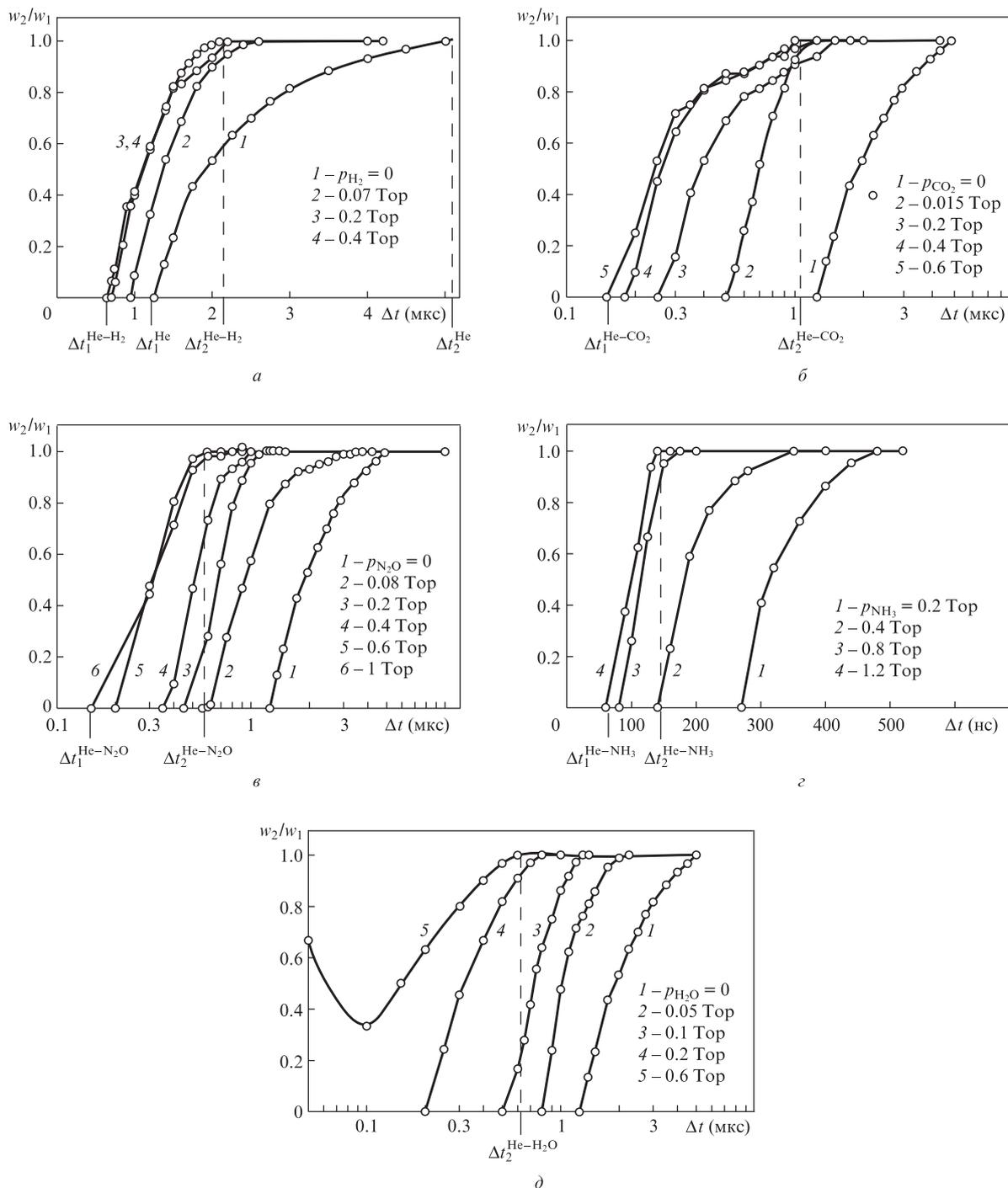


Рис.3. Зависимости отношения w_2/w_1 от задержки Δt между импульсами накачки при $p_{He} = 7$ Тор и возбуждении сдвоенным импульсом в смесях He-H₂ (а), He-CO₂ (б), He-N₂O (в), He-NH₃ (з) и He-H₂O (д).

рис.3.а. Видно, что генерация возникает при $\Delta t_1 = 1.25$ мкс и полностью восстанавливается при $\Delta t_2 = 5$ мкс. Скорость восстановления слабо зависит от энергии импульса накачки. Подобная зависимость является типичной для лазеров на самоограниченных переходах, накачиваемых ЭП, и определяется скоростью релаксации МС в послесвечении [22, 30, 31].

Введение молекулярных примесей ускоряет процесс восстановления генерации во втором импульсе. Время восстановления существенно зависит от рода примеси и (для некоторых условий) от ее давления p_{mol} . С ростом p_{mol} для димеров (H₂, N₂, O₂) величины Δt_1 и Δt_2 вначале быстро уменьшаются, а затем остаются неизменными вплоть до

предельного давления p_{mol} , при котором генерация еще наблюдается (рис.3.а). Наиболее быстро генерация восстанавливается в смеси He-H₂, для которой $\Delta t_1 = 0.64$ мкс и $\Delta t_2 = 2.2$ мкс.

Более быстрое восстановление генерации реализуется в смесях He с трехатомными молекулами: симметричной молекулой CO₂ и слабополярной молекулой N₂O, дипольный момент которой $d_{N_2O} = 0.16$ Д (1 Д = 0.33×10^{-29} Кл·м) (рис.3.б, в). Однако, как и в смесях с димерами, при превышении давлением примеси определенного значения уменьшение $\Delta t_1, \Delta t_2$ прекращается. Для молекулы N₂O минимальные значения Δt_1 и Δt_2 равны 0.15 и 0.6 мкс, а для CO₂ – соответственно 0.15 и 1 мкс.

Наименьшее время восстановления генерации во втором импульсе наблюдается в смесях с полярными молекулами NH_3 и H_2O с большими дипольными моментами: $d_{\text{NH}_3} = 1.46 \text{ Д}$, $d_{\text{H}_2\text{O}} = 1.84 \text{ Д}$ (рис.3,з,д), причем в смеси с H_2O при $p_{\text{H}_2\text{O}} > 0.5 \text{ Тор}$ генерация не исчезает. В этом случае при $\Delta t < 100 \text{ нс}$ для второго импульса наблюдается рост отношения w_2/w_1 , являющийся следствием временного перекрытия импульсов генерации. Следует отметить, что это явление – перекрытие импульсов генерации при сближении одинаковых импульсов накачки – для лазеров на самоограниченных переходах зарегистрировано впервые.

4. Исследование параметров генерации в режиме возбуждения длинными импульсами

На рис.4 приведены осциллограммы импульсов накачки и лазерного излучения при возбуждении чистого He длинными импульсами. Для всех экспериментальных условий ($p_{\text{He}} = 6\text{--}50 \text{ Тор}$, ток ЭП равен $0.16\text{--}2.34 \text{ кА}$, напряжение разряда $U = 2.4\text{--}6.2 \text{ кВ}$) наибольшая длительность импульса генерации составила 50 нс по основанию со статистической погрешностью $\pm 3 \text{ нс}$. Такая же максимальная длительность импульса генерации реализуется в смесях гелия с H_2 , N_2 , O_2 , CO_2 и N_2O вплоть до давления примеси, при котором генерация еще существует. Совершенно по-другому происходит генерация в смесях гелия с H_2O и NH_3 . Введение примесей H_2O (до 0.6 Тор) и NH_3 (до 1.3 Тор) при $p_{\text{He}} = 6 \text{ Тор}$ приводит к увеличению энергии генерации (в смесях с H_2O в 30 раз) и длительности импульса за счет удлинения его заднего фронта (рис.5, осциллограммы 1–4).

При возбуждении одиночными импульсами вид импульсов генерации зависит не только от давления молекулярной примеси p_{mol} , но и от мощности накачки P_p (рис.6). Максимально достижимая мощность накачки, в свою очередь, зависит от длительности ОР и ограничена возникновением неустойчивости генерации ЭП при превышении мощностью определенного значения. Например, в смеси $\text{He}\text{--}\text{H}_2\text{O}$ при давлениях $p_{\text{He}} = 6 \text{ Тор}$ и $p_{\text{H}_2\text{O}} = 1.3 \text{ Тор}$ наибольшая мощность накачки составляет 480 кВт при длительности ее импульса на полувысоте $\tau_p = 280 \text{ нс}$, 150 кВт при $\tau_p = 500 \text{ нс}$ и 72 кВт при $\tau_p = 680 \text{ нс}$.

При больших давлениях $p_{\text{H}_2\text{O}}$ и малых мощностях накачки импульс генерации не имеет переднего пика и появ-

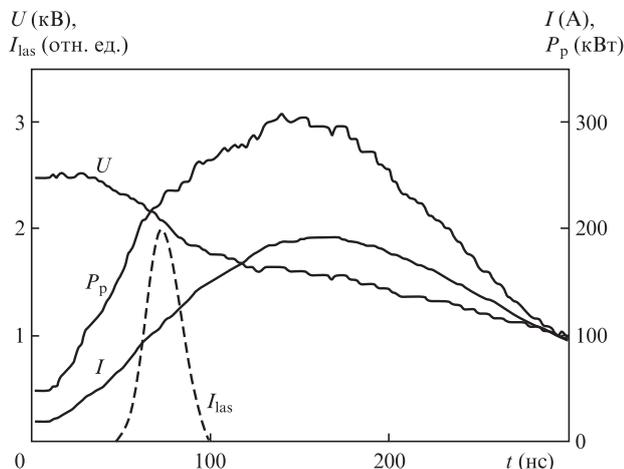


Рис.4. Осциллограммы напряжения U , тока I и мощности разряда P_p , а также импульса лазерного излучения (I_{las}) при $p_{\text{He}} = 12 \text{ Тор}$.

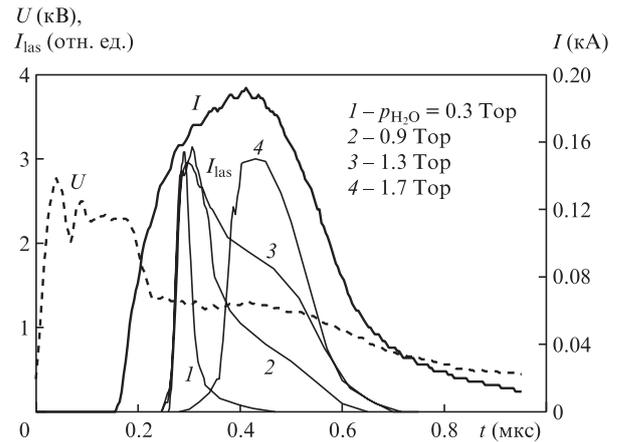


Рис.5. Осциллограммы импульсов лазерного излучения (I_{las}) при различных давлениях паров воды, $p_{\text{He}} = 6 \text{ Тор}$ и одинаковых напряжениях U и токе I разряда, осциллограммы которых также приведены на рисунке.

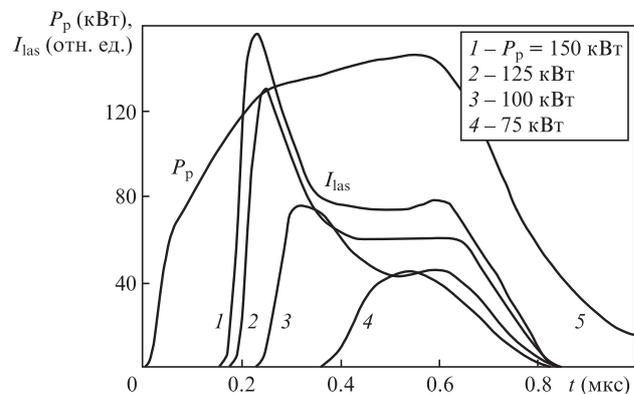


Рис.6. Осциллограммы импульсов лазерного излучения (I_{las}) при различных P_p (1–4) и мощности разряда P_p (5) при $p_{\text{He}} = 6 \text{ Тор}$ и $p_{\text{H}_2\text{O}} = 0.9 \text{ Тор}$.

ляется с большой задержкой относительно начала импульса тока. В смесях гелия с H_2O и NH_3 генерация происходит при значительно меньших мощностях накачки, чем в чистом гелии. Например, в смеси $\text{He}\text{--}\text{H}_2\text{O}$ при давлениях $p_{\text{He}} = 6 \text{ Тор}$ и $p_{\text{H}_2\text{O}} = 1 \text{ Тор}$ генерация возникает при напряжении в максимуме тока $U = 1.08 \text{ кВ}$ и токе $I = 100 \text{ А}$, в то время как в чистом гелии пороговые для возникновения генерации значения U и I составляют 2.4 кВ и 180 А . Оптимальный диапазон давлений гелия при добавлении примеси смещается в сторону меньших значений p_{He} . Генерация на $\lambda = 2.058 \text{ мкм}$ наблюдается в смеси $\text{He}\text{--}\text{H}_2\text{O}$ при $p_{\text{He}} = 0.7 \text{ Тор}$ и $p_{\text{H}_2\text{O}} = 0.7 \text{ Тор}$, тогда как в чистом гелии минимальное рабочее давление $p_{\text{He}} = 6 \text{ Тор}$. Диапазон давлений ($p_{\text{He}} > 9 \text{ Тор}$), при которых возможна генерация в смесях гелия с молекулярными примесями, ограничен возникновением неустойчивости генерации ЭП.

5. Измерение скорости релаксации и констант девозбуждения состояния $\text{He}(2^1S_0)$ в смесях с молекулярными добавками

Для понимания механизма возникновения квазинепрерывной генерации необходима информация о константах девозбуждения метастабильного состояния $\text{He}(2^1S_0)$. Однако для их измерения требуется соблюдение ряда усло-

вий, невыполнение которых препятствует получению надежных данных. По этой причине, насколько нам известно, имеется всего лишь одна работа, в которой измерены, причем косвенным методом и без указания точности, константы тушения атомов He (2^1S_0) сложными молекулами [32]. Основная трудность состоит в том, что константа скорости тушения k_e^m состояния He (2^1S_0) электронами в состоянии He (2^3S_1) чрезвычайно велика и составляет $4 \times 10^{-7} \text{ см}^3/\text{с}$ [33]. Фактически уже при незначительной концентрации электронов n_e , необходимой для получения приемлемого количества атомов He (2^1S_0), населенности состояний He (2^1S_0) и He (2^3S_1) релаксируют в основное состояние He (1^1S_0) как единое целое с константой $k_e(2^3S_1) = 4.2 \times 10^{-9} \text{ см}^3/\text{с}$ [34, 35]. Кроме того, атомы He (2^1S_0) могут участвовать в быстрых реакциях тушения при соударениях друг с другом, с атомами He (2^3S_1) и He (1^1S_0) [33, 35].

С учетом вышесказанного параметры ЭП и давление He для тестовой кюветы выбирались такими, чтобы скорость тушения электронами $k_e^m n_e$ состояния He (2^1S_0) не превышала 10^5 с^{-1} , а суммарная скорость тушения во всех остальных процессах $\sum_i k_i^m n_i$, включая диффузию на стенки, не превышала 10^4 с^{-1} . Конкретно в экспериментах при диаметре тестовой кюветы 5 см измерения проводились при $p_{\text{He}} = 8-15 \text{ Тор}$, токе ЭП не более 5 А, длительности импульса на полувывоте 15 нс и амплитуде напряжения $\sim 4 \text{ кВ}$. Основываясь на методе расчета концентрации n_e , использовавшемся в работе [27], мы получили оценку ее верхней границы $2 \times 10^{11} \text{ см}^{-3}$. Измерения при таком значении n_e также гарантируют незначительность подзаселения МС в рекомбинационных процессах, что дополнительно контролировалось по интенсивности рекомбинационного излучения в системах синглетных и триплетных уровней гелия. Следует отметить, что уже при давлении примеси $p_{\text{mol}} \sim 10 \text{ мТор}$ интенсивность рекомбинационного излучения гелия снижается более чем на порядок и его длительность существенно уменьшается. Это объясняется перезарядкой ионов гелия на молекулах примеси с их последующей диссоциативной рекомбинацией. При $p_{\text{mol}} \sim 100 \text{ мТор}$ рекомбинационное излучение гелия практически исчезает.

На рис.7 в качестве примера для чистого He приведена кривая восстановления прозрачности среды в тестовой кювете после окончания импульса возбуждения. Вычислен-

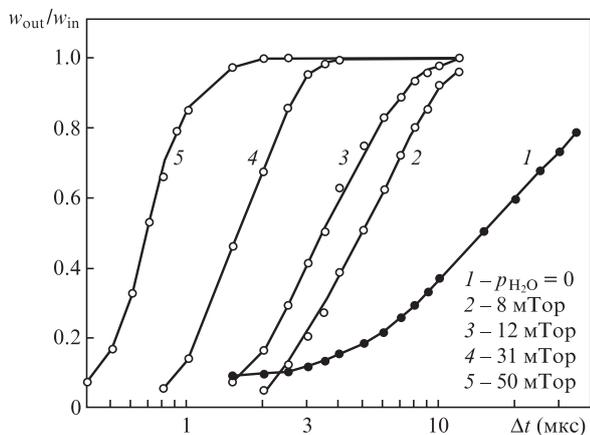


Рис.7. Зависимости отношения $w_{\text{out}}/w_{\text{in}}$ энергий прошедшего через тестовую среду и входящего в нее пробного излучения от времени задержки Δt между импульсами для смеси He-H₂O при различных давлениях паров воды и $p_{\text{He}} = 8 \text{ Тор}$.

ная на основе этих данных константа скорости k_e^m электронного девозбуждения состояния He (2^1S_0) составила $(3.8 \pm 0.4) \times 10^{-7} \text{ см}^3/\text{с}$, что с приемлемой точностью совпадает со справочными данными ($k_e^m = 4 \times 10^{-7} \text{ см}^3/\text{с}$ [33]). На том же рисунке представлены зависимости $w_{\text{out}}/w_{\text{in}}$ от времени задержки Δt для смеси He-H₂O. Аналогичные зависимости получены для смесей гелия с молекулами NH₃, CO₂ и N₂O, которые оказывают наибольшее влияние на скорость восстановления генерации во втором импульсе. Найденные на основе этих результатов зависимости скорости релаксации МС He (2^1S_0) от давления примеси показаны на рис.8, а константы тушения представлены в табл.1, где также (без указания точности измерений) приведены данные из работы [32], полученные, как упоминалось выше, косвенным методом.

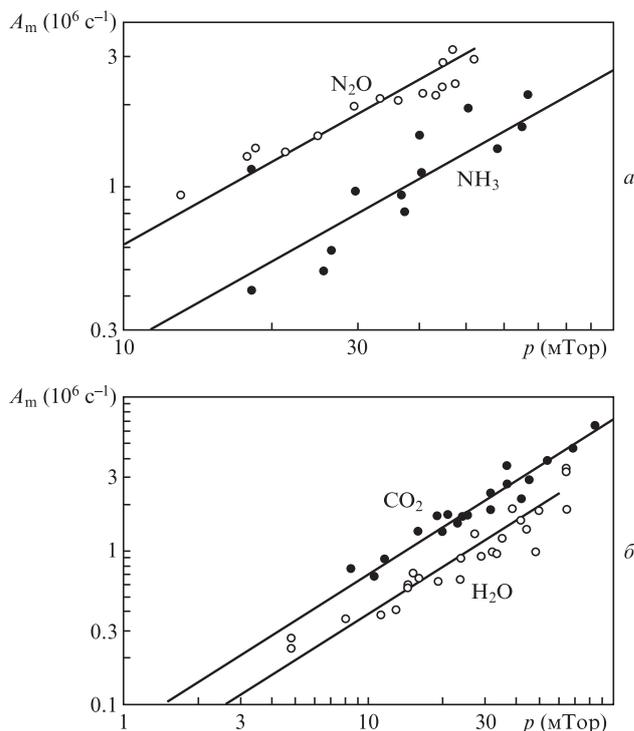


Рис.8. Зависимости скорости девозбуждения состояния He (2^1S_0) от давления молекулярных примесей NH₃ и N₂O (а), CO₂ и H₂O (б). Точки – экспериментальные данные, прямые соответствуют вычисленным константам девозбуждения, приведенным в табл.1.

Табл.1. Константы скоростей девозбуждения He (2^1S_0) при столкновениях с молекулами.

Примесь	k_i^m ($10^{-9} \text{ см}^3/\text{с}$)	
	настоящая работа	[32]
H ₂ O	1.2 ± 0.3	–
NH ₃	0.8 ± 0.2	1.33
N ₂ O	1.9 ± 0.2	0.92
CO ₂	2.2 ± 0.4	1.1

6. Обсуждение результатов

6.1. Длительность импульса генерации в самоограниченном режиме

Наибольшая реализованная в настоящей работе длительность импульса генерации τ_{max} при линейном во времени возрастании мощности накачки (рис.4) состави-

ла 50 нс. Это существенно меньше длительности $\tau_{\max} = 2/A_{\text{rm}} \approx 1$ мкс ($A_{\text{rm}} = 1.974 \times 10^6 \text{ c}^{-1}$ – вероятность переходов $\text{He}(2^1\text{P}_1^0 - 2^1\text{S}_0)$ [36]), определенной при этом условии исходя из модели работы [37]. Механизмы, приводящие к уменьшению длительности импульса генерации по сравнению с полученной в [37], рассмотрены в работе [26]. В ней показано, что τ_{\max} значительно уменьшается при учете распада резонансного состояния в основное, а также подзаселения электронами нижних МС. Особенностью гелия как активной среды является то, что состояния $\text{He}(k^1\text{P}_1^0)$ с $k > 2$ также эффективно заселяются электронами [38, 39]. Поскольку они быстро распадаются в МС $\text{He}(2^1\text{S}_0)$ (рис.9, табл.2), то, помимо прямого возбуждения МС электронами ЭП, в уравнении для населенности МС необходимо учитывать процессы заселения состояния $\text{He}(2^1\text{S}_0)$ за счет спонтанного излучения с уровней $\text{He}(k^1\text{P}_1^0)$. В результате система уравнений, описывающая заселение резонансного и метастабильного состояний на фронте импульса накачки (т. е. при условии $n_0 \gg n_r \sim n_m \sim n_k$), имеет следующий вид:

$$\begin{aligned} \dot{n}_i &= n_0 v_i F, \\ \dot{n}_k &= n_0 v_k F - n_k A_{km}, \\ \dot{n}_r &= n_0 v_r F - n_r A_{\Sigma}, \\ \dot{n}_m &= n_0 v_m F + n_r A_{\text{rm}} + \sum_{k=3}^5 n_k A_{km} - n_m A_m, \end{aligned} \quad (2)$$

где n_0, n_r, n_m – населенности основного, резонансного и метастабильного состояний соответственно; n_k ($k = 3, 4, 5$) –

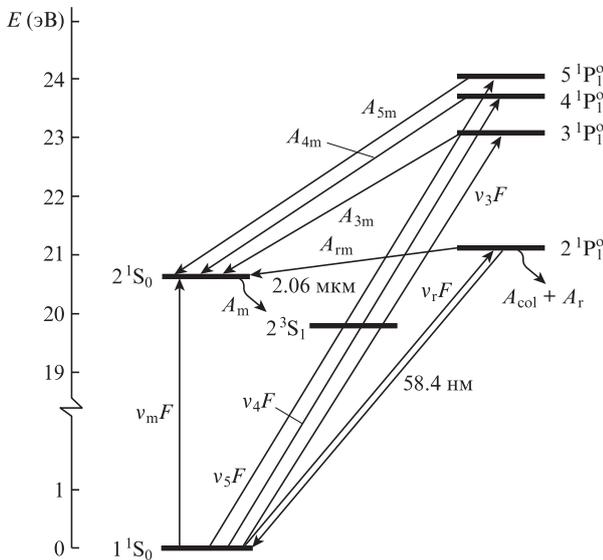


Рис.9. Схема уровней атома гелия и рассматриваемых процессов.

Табл.2. Относительные частоты v_l ($l = i, m, r, k$) ионизации и возбуждения атома гелия из основного состояния и вероятности переходов A_{km} с уровней $k^1\text{P}_1^0$ на уровень 2^1S_0 .

l	Состояние	v_l [39]	A_{km} (10^6 c^{-1}) [36]
i	$\text{He}^+ (^2\text{S}_{1/2})$	1	–
m	$\text{He}(2^1\text{S}_0)$	0.055	–
r	$\text{He}(2^1\text{P}_1^0)$	0.35	1.99
$k = 3$	$\text{He}(3^1\text{P}_1^0)$	0.11	13.4
$k = 4$	$\text{He}(4^1\text{P}_1^0)$	0.044	6.93
$k = 5$	$\text{He}(5^1\text{P}_1^0)$	0.022	3.92

населенности состояний $\text{He}(k^1\text{P}_1^0)$; A_{km} – вероятности переходов $\text{He}(k^1\text{P}_1^0 - 2^1\text{S}_0)$ [36]; $A_{\Sigma} = A_{km} + A_r + A_{\text{col}}$; $A_r = 0.238 A_0 \sqrt{\lambda_0/r} = 0.67 \times 10^6 \text{ c}^{-1}$ – вероятность выхода резонансного излучения из центра трубки [26, 40] (радиус трубки $r = 2.5$ см); $\lambda_0 = 58.4$ нм; $A_0 = 1.8 \times 10^9 \text{ c}^{-1}$ – вероятность перехода $\text{He}(2^1\text{P}_1^0 - 1^1\text{S}_0)$ [36]; A_{col} и A_m – вероятности безызлучательных переходов из РС и МС; F – скорость накачки в числа актов взаимодействия на один атом He ; $v_{m,k,r}$ – частоты возбуждения соответствующих уровней гелия из основного состояния, отнесенные к частоте ионизации v_i гелия в основном состоянии для ЭП с энергией в несколько килоэлектронвольт, взятые из [39] (табл.2). Начальная концентрация электронов $n_e(t = 0)$ полагалась равной нулю.

В чистом гелии $A_{\text{col}} = A_m = 0$. При условии, что генерация на самоограниченном переходе прекращается в момент времени, когда $\dot{n}_r/g_r = \dot{n}_m/g_m$ (g_r, g_m – статвеса соответственно РС и МС) [26], решение системы (1) дает $\tau_{\max}^{(1)} = 50$ нс при $F = F_0 t$, что совпадает с результатом эксперимента (рис.4). При прямоугольном импульсе накачки ($F = F_0$) имеем $\tau_{\max}^{(2)} = 24$ нс. Поскольку в смесях гелия с H_2O и NH_3 длительность импульса генерации $\tau \gg \tau_{\max}^{(1,2)}$, то отсюда заключаем, что в этих случаях осуществлен перевод «самоограниченной» генерации в квазинепрерывную «столкновительную».

6.2. Механизмы восстановления генерации во втором импульсе

Как уже упоминалось в разд.3, восстановление генерации в лазерах на самоограниченных переходах при их накачке ЭП определяется скоростью релаксации МС. Наиболее быстрым процессом девозбуждения, как правило, является девозбуждение при соударениях с электронами [22]. Константа k_e^m для состояния $\text{He}(2^1\text{S}_0)$ чрезвычайно велика и превышает таковые для всех известных МС, являющихся нижними рабочими уровнями в лазерах на самоограниченных переходах [22]. Однако восстановление генерации во втором импульсе в чистом He протекает значительно медленнее, чем, например, для лазера на парах свинца ($\lambda = 722.9$ нм) [30], для которого $\Delta t_1 = 0.45$ мкс и $\Delta t_2 = 1.6$ мкс. Особенность He -лазера – малая разность энергий состояний $\text{He}(2^1\text{S}_0)$ и $\text{He}(2^3\text{S}_1)$: $\Delta E \sim 0.66$ эВ. Состояние $\text{He}(2^3\text{S}_1)$ сравнительно медленно девозбуждается электронами ($k_e(2^3\text{S}_1) = 4.2 \times 10^{-9} \text{ cm}^3/\text{c}$ [35]), что способствует накоплению атомов $\text{He}(2^3\text{S}_1)$ в течение импульса. Скорость охлаждения плазменных электронов при упругих соударениях с атомами гелия $A_{e\text{He}} = \langle \sigma_e v_e \rangle n_{\text{He}} m_e m_{\text{He}}$ (σ_e – сечение упругих соударений электронов с атомами гелия, v_e и m_e – скорость и масса электрона, m_{He} – масса атома гелия) невелика ($1.24 \times 10^5 \text{ c}^{-1} \cdot \text{Top}^{-1}$ для $T_e = 1$ эВ), и поэтому их эффективная температура в ближнем послесвечении превышает значение 0.1 эВ, характерное для стационарной T_e в пучковой гелиевой плазме [41]. В результате МС $\text{He}(2^1\text{S}_0)$ релаксирует в ближнем послесвечении со скоростью, равной скорости охлаждения электронов, и это обуславливает сравнительно медленное восстановление генерации во втором импульсе при независимости скорости ее восстановления от n_e .

Введение молекулярных примесей ускоряет все три процесса, влияющие на релаксацию состояния $\text{He}(2^1\text{S}_0)$. Во-первых, из-за большого сечения упругих соударений электронов с молекулами [33, 42] и возбуждения вращательных и колебательных состояний [43] молекул ускоряется охлаждение электронов. Во-вторых, появляется до-

полнительный канал эффективного девозбуждения уровня $\text{He}(2^3\text{S}_1)$ молекулами [33], что также снижает населенность уровня $\text{He}(2^1\text{S}_0)$. В-третьих, состояние $\text{He}(2^1\text{S}_0)$ быстро девозбуждается непосредственно в соударениях с молекулами (табл. 1). Однако скорости этих процессов, и прежде всего первого, существенно различаются для разных сортов газов. Возбуждение колебательных состояний молекул при $T_e > 0.5$ эВ значительно увеличивает скорость охлаждения электронов. Однако накопление молекул на колебательных уровнях, наоборот, замедляет скорость охлаждения электронов при малых T_e вследствие передачи им энергии при столкновениях с молекулами. В этом случае в критическом для He-лазера интервале T_e скорость охлаждения электронов определяется скоростью релаксации колебательных состояний при взаимных соударениях молекул (VT-релаксация), что оказывает решающее влияние на восстановление генерации во втором импульсе. Скорость VT-реакций возрастает в ряду димеры – слабополярные трехатомные молекулы – полярные молекулы [44–47], что и позволяет сблизить импульсы генерации вплоть до их слияния в смесях гелия с H_2O .

6.3. Механизм квазинепрерывной столкновительной генерации

В условиях настоящей работы быстрая релаксация МС, как следует из вышесказанного, реализуется в двух принципиально разных процессах: в соударениях с плазменными электронами и тяжелыми частицами. На рис.10 в качестве результата решения системы (1) приведены зависимости τ_{\max} от n_e и от скорости релаксации МС при соударениях с молекулами для разных условий возбуждения: прямоугольными импульсами и при линейно возрастающей во времени мощности накачки.

Из кривых 1–4 видно, что при достижении вполне определенных значений n_e и A_m должен осуществляться перевод «самоограниченной» генерации в квазинепрерывную. Однако в экспериментах в чистом гелии ни при каких условиях, вплоть до $n_e \sim 10^{14} \text{ см}^{-3}$, не было получено удлинения импульсов генерации. Два процесса могут приводить к такому результату: девозбуждение РС плазменными электронами и медленное охлаждение плазмен-

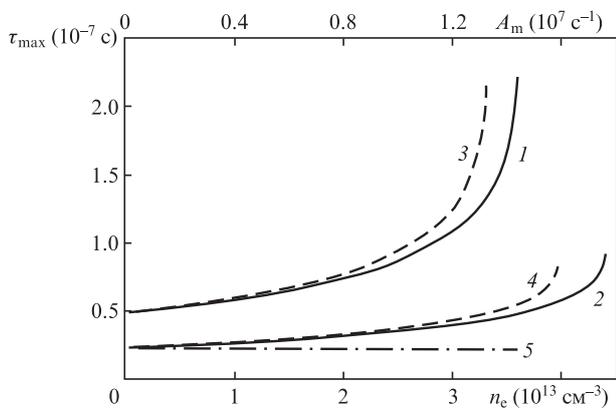


Рис.10. Максимальная длительность импульса генерации τ_{\max} в зависимости от концентрации плазменных электронов n_e с учетом электронного девозбуждения лазерных уровней (1, 2) и от скорости A_m девозбуждения состояния $\text{He}(2^1\text{S}_0)$ молекулами в отсутствие тушения РС (3, 4) и при $A_{\text{col}} = A_m$ (5). Кривые 1 и 3 получены при линейной зависимости от времени скорости накачки ($F = F_0 t$), кривые 2, 4, 5 – при прямоугольном импульсе накачки ($F = F_0$).

ных электронов, обуславливающее их высокую температуру T_e и, следовательно, отсутствие инверсии. Вычисленная по данным [48] константа скорости тушения РС электронами ($k_c^r = 2.3 \times 10^{-8} \text{ см}^3/\text{с}$) и измеренное время восстановления генерации во втором импульсе (через ~ 5 мкс, когда рекомбинационные процессы еще не привели к существенному снижению концентрации электронов, оставшихся от предыдущего импульса) показывают, что первый процесс не играет существенной роли. Следовательно, второй процесс, являющийся основным препятствием для быстрого восстановления генерации во втором импульсе, также ответствен за блокирование развития квазинепрерывной генерации.

С другой стороны, при накачке длинными прямоугольными импульсами в смесях гелия с H_2O и NH_3 генерация развивается со значительной задержкой Δt относительно начала импульса накачки (рис.6). Отсутствие генерации в течение времени Δt можно объяснить тем, что скорость релаксации РС атомов при соударениях с молекулами обычно не меньше скорости релаксации МС (см., напр., [33, 49]). Для этого случая, т.е. когда $A_{\text{col}} \sim A_m$, инверсия населенности не может быть достигнута [26]. В качестве примера на рис.10 приведена зависимость 5, являющаяся результатом решения системы (2) при условии $A_{\text{col}} \sim A_m$. И только «подключение» через время Δt другого селективного для атомов He процесса – тушения электронами – приводит к возникновению генерации. К моменту ее развития n_e , согласно решению системы (2), достигает $\sim 2 \times 10^{13} \text{ см}^{-3}$, что соответствует скорости девозбуждения МС гелия $k_c^m n_e = 0.8 \times 10^7 \text{ с}^{-1}$. При $k_{\text{H}_2\text{O}}^m = 1.2 \times 10^{-9} \text{ см}^3/\text{с}$ и концентрации $n_{\text{H}_2\text{O}} = 10^{16} \text{ см}^{-3}$ ($p_{\text{H}_2\text{O}} = 0.3$ Тор) вероятность $A_m = k_{\text{H}_2\text{O}}^m n_{\text{H}_2\text{O}}$ составляет $\sim 1.2 \times 10^7 \text{ с}^{-1}$, что сопоставимо со скоростью девозбуждения МС электронами. Таким образом, квазистационарная инверсия в He-лазере реализуется при совместном действии двух универсальных механизмов девозбуждения нижнего рабочего состояния: плазменными электронами и молекулярными газами. Именно влияние плазменных электронов объясняет тот факт, что скорость девозбуждения метастабильного состояния $\text{He}(2^1\text{S}_0)$ молекулами CO_2 и N_2O выше, чем молекулами NH_3 и H_2O , однако квазинепрерывная генерация в присутствии первых не реализуется, и генерация во втором импульсе развивается позже вследствие сравнительно высокой температуры второго необходимого релаксанта – электронов.

7. Заключение

В настоящей работе исследована генерация на переходе $\text{He}(2^1\text{P}_1^0 - 2^1\text{S}_0)$ с $\lambda = 2.058$ мкм в чистом гелии и его смесях с H_2 , N_2 , O_2 , CO_2 , H_2O , NH_3 и N_2O при электронно-пучковом возбуждении как одиночными (с длительностью 25–700 нс), так и сдвоенными импульсами. В чистом гелии получена типичная «самоограниченная» генерация, максимальная длительность импульса которой равна 50 нс. Восстановление генерации во втором импульсе начинается при его временном сдвиге, превышающем 1.25 мкс. Введение добавок CO_2 , N_2O , NH_3 и H_2O увеличивает скорость релаксации населенности МС $\text{He}(2^1\text{S}_0)$ и уменьшает время восстановления генерации во втором импульсе вплоть до перекрытия импульсов генерации в смеси He– H_2O . При возбуждении импульсом длительностью ~ 1.2 мкс в смесях гелия с NH_3 и H_2O получена генерация с длительностью импульса ~ 0.8 мкс, что свидетель-

стует о реализации столкновительного квазинепрерывного режима. Данный режим возможен при совокупном действии двух универсальных для атомов механизмов де-возбуждения нижнего рабочего состояния: плазменными электронами и молекулярными газами. Таким образом, высказанное в работе [24] предположение о том, что в ней осуществлен перевод генерации из самоограниченного в столкновительный режим новым методом, не реализованным ранее, получило теоретическое и экспериментальное подтверждение. Это открывает возможность получения столкновительной генерации на других активных средах и, следовательно, в других диапазонах спектра, в том числе и в видимом.

1. Бутаева Ф.А., Фабрикант В.А. *Исследования по экспериментальной и теоретической физике. Памяти Г.С.Ландсберга* (М.: изд-во АН СССР, 1959, с. 62).
2. Bennett W.R. *Appl. Opt.*, Suppl. №1, 3 (1965).
3. Gould G. *Appl. Opt.*, Suppl. №2, 59 (1965).
4. Тычинский В.П. *УФН*, **91**, 379 (1967).
5. Петраш Г.Г. *Квантовая электроника*, **39**, 111 (2009).
6. Beach R.J., Krupke W.F., Kanz V.K., Payne S.A., Dubinskii M.A., Merkle L.D. *J. Opt. Soc. Am. B*, **21** (12), 2151 (2004).
7. Дидюков А.И., Кулагин Ю.А., Шелепин Л.А. и др. *Квантовая электроника*, **16**, 892 (1989).
8. Necht J. *Laser Focus World*, №4, 36 (2010).
9. Bloembergen N., Patel C.K.N., Clem R.G., et al. *Rev. Mod. Phys.*, **59**, 91 (1987).
10. Бохан П.А. *Письма в ЖТФ*, **12**, 161 (1986).
11. Бохан П.А., Клишкин В.М., Прокопьев В.Е. *Письма в ЖЭТФ*, **18**, 80 (1973).
12. Клишкин В.М., Монастырев С.С., Прокопьев В.Е. *Письма в ЖЭТФ*, **20**, 251 (1974).
13. Husain D., Robert G.J. *J. Chem. Soc. Faraday Trans.*, **82**, 1935 (1986).
14. Powell H.T., Murray J.R., Rhodes C.K. *Appl. Phys. Lett.*, **34**, 271 (1979).
15. Правилев А.М., Сидоров И.И., Скороходов В.А. *Квантовая электроника*, **10**, 1696 (1983).
16. Schimeder D., Brink D.I., Salamon J.J., et al. *Opt. Commun.*, **66**, 223 (1981).
17. Басов Н.Г., Данилычев В.А., Холин И.В. *Изв. АН СССР. Сер. физич.*, **50**, 779 (1986).
18. Бункин Ф.В., Держиев В.Н., Месяц Г.А. и др. *Изв. АН СССР. Сер. физич.*, **50**, 1064 (1986).
19. Basov N.G., Varanov U.V., Chungunov A.Y., et al. *IEEE J. Quantum Electron.*, **21**, 1756 (1985).
20. Ohava M., Mozart T.J. *J. Appl. Phys.*, **66**, 5131 (1989).
21. Бохан П.А. *Письма в ЖЭТФ*, **42**, 335 (1985).
22. Бохан П.А. *Квантовая электроника*, **13**, 1837 (1986).
23. Басов Н.Г., Александров А.Ю., Данилычев В.А. и др. *Письма в ЖЭТФ*, **42**, 39 (1985).
24. Бельская Е.В., Бохан П.А., Закревский Д.Э., Лаврухин М.А. *Квантовая электроника*, **40**, 1116 (2010).
25. Петраш Г.Г. *УФН*, **105**, 645 (1971).
26. Бохан П.А. *Квантовая электроника*, **41**, 110 (2011).
27. Бельская Е.В., Бохан П.А., Закревский Д.Э. *Квантовая электроника*, **38**, 823 (2008).
28. Бохан П.А., Сорокин А.Р. *ЖТФ*, **55**, 88 (1985).
29. Карлов Н.В. *Лекции по квантовой электронике* (М.: Наука, 1983).
30. Бохан П.А. *Квантовая электроника*, **12**, 945 (1985).
31. Бохан П.А., Сорокин А.Р. *Квантовая электроника*, **17**, 1426 (1990).
32. Schmeltekopf A.L., Fehsenfeld F.C. *J. Chem. Phys.*, **53**, 3173 (1970).
33. *Справочник констант элементарных процессов с участием атомов, ионов, электронов, фотонов*. Под ред. А.Г.Жиглинского (С.-Пб.: изд-во Санкт-Петербургского ун-та, 1994).
34. Newman L.A. *IEEE J. Quantum Electron.*, **17**, 1182 (1981).
35. Deloche R., Monchicourt P., Cheret M., et al. *Phys. Rev. A*, **13**, 1140 (1976).
36. Wiese W.L., Fuhr J.R. *J. Phys. Chem. Ref. Data*, **38** (3), 565 (2009).
37. Солдатов А.Н., Соломонов В.И. *Газоразрядные лазеры на самоограниченных переходах в парах металлов* (Новосибирск: Наука, 1985).
38. Stone P.M., Kim Y.-K., Desclaux J.P. *J. Res. Nat. Inst. Stand. Technol.*, **107**, 327 (2002).
39. Сычко Ю.Н., Яковленко С.И. *Физика плазмы*, **2**, 63 (1976).
40. Phelps A.V. *Phys. Rev.*, **117**, 619 (1960).
41. Yu Z., Rocca J.J., Collins G.J. *Phys. Lett. A*, **96**, 125 (1983).
42. Мак-Даниель М. *Процессы столкновений в ионизированных газах* (М.: Мир, 1967).
43. Itikawa Y., Mason N. *J. Phys. Chem. Ref. Data*, **34**, 1 (2005).
44. Ступоченко Е.В., Лосев С.А., Осипов А.Н. *Релаксационные процессы в ударных трубах* (М.: Наука, 1965).
45. Гордиец Б.Ф., Осипов А.И., Ступоченко Е.В. и др. *УФН*, **108**, 655 (1972).
46. *Неравновесная колебательная кинетика*. Под ред. М.Капителли (М.: Мир, 1989).
47. *Химические лазеры*. Под ред. Р.Гросса, Д.Бетта (М.: Мир, 1980).
48. Fon W.C., Berrington K.A., Burke P.G., Kingston A.E. *J. Phys. B.: At. Mol. Phys.*, **14**, 2921 (1981).
49. Окабе Х. *Фотохимия малых молекул* (М.: Мир, 1981).