

УДК 533.9 : 546.34

КИНЕТИКА РАСПАДА ПЛАЗМЫ В ПАРАХ ЛИТИЯ. ФОРМИРОВАНИЕ ИНВЕРСНОСТИ НА ПЕРЕХОДЕ $3p-3s$

Л. В. Воронюк, В. А. Квицинский, В. И. Лукашенко
и Г. В. Питателев

В смеси литий—гелий исследована кинетика распада плазмы и формирования инверсной заселенности между уровнями $3p-3s$ при давлении гелия 40 тор и плотности паров лития $7 \cdot 10^{13} \text{ см}^{-3}$. Показано, что независимо от условий в разряде, инверсность реализуется при концентрации «остывших» электронов меньше $2 \cdot 10^{12} \text{ см}^{-3}$ вследствие разных радиационных времен жизни уровней $3p$ и $3s$. Определено сечение девозбуждающих переходов $3p-3s$ за счет электронного удара. Оценен коэффициент усиления на длине волны 2,69 мкм.

В в е д е н и е

После обширного цикла теоретических исследований и целого ряда экспериментальных работ [1] возможность реализации инверсной населенности в интенсивно рекомбинирующей щелочной плазме не вызывает сомнений.

В режиме стационарного стока рекомбинационный поток, скатываясь вниз по энергетическим уровням атома, приводит к возникновению инверсности за счет различия во временах жизни возбужденных состояний.

Своеобразие энергетической структуры щелочного атома, проявляющееся в весьма значительном расщеплении термов, соответствующих одному значению главного n , но разным значениям орбитального квантового числа l , делает инверсность наиболее легко достижимой на переходах $np-ns$ и $ns-(n-1)p$. Оптимальные условия, при которых наблюдается указанный эффект, зависят как от химического элемента, так и от выбранной пары уровней. Однако характерным для атомов всех щелочных металлов является то, что на переходах $np-ns$ инверсность реализуется, как правило, лишь в радиационном режиме распада, когда девозбуждение рассматриваемых уровней происходит за счет излучения. Этот случай соответствует области сравнительно низких концентраций электронов ($n_e \leq 10^{12} \text{ см}^{-3}$).

Для переходов типа $ns-(n-1)p$ наиболее благоприятными являются средние плотности заряженных частиц ($n_e \approx 10^{12}-10^{15} \text{ см}^{-3}$), при которых скорость дезактивации ns и $(n-1)p$ возбужденных состояний контролируется «тушащими» столкновениями со свободными электронами (столкновительный распад).

В условиях более плотной плазмы ($n_e > 10^{15} \text{ см}^{-3}$), где распад носит квазистационарный характер [2], возможность реализации инверсности на переходах нейтральных щелочных атомов оказывается проблематичной.

Вышеизложенное наглядно демонстрируется детальными теоретическими расчетами, выполненными для интенсивно рекомбинирующей плазмы в парах лития [3] и натрия [4]. Эти самые легкие представители щелочного ряда позволяют, в принципе, осуществить генерацию лазерного излучения в более коротковолновой части спектра, чем калий, рубидий и цезий. В то же время экспериментальные исследования были ограничены рассмотрением рекомбинационного распада плазмы лишь в парах тяжелых щелочных элементов Cs [5, 6] и K [7], что связано, в первую очередь, с их меньшей по сравнению с Na, и особенно с Li, химической активностью по отношению к основным типам стекол, используемых в лабораторной практике. Устойчивыми к воздействию

жидкого и парообразного лития оказывается весьма ограниченный ряд веществ, как правило, либо нетехнологичных (например, окись бериллия), либо электропроводных (нержавеющая сталь), что не позволяло до настоящего времени получать электроразрядную литиевую плазму и исследовать ее свойства.

Благодаря новым конструктивным решениям нам удалось преодолеть указанные трудности и провести в распадающейся литиевой разрядной плазме цикл измерений, основной целью которых явилось изучение кинетики формирования инверсии на переходе атома лития $3p-3s$.

Описание экспериментальной установки

Экспериментальная установка аналогична описанной в работе [8]. За основу конструкции разрядной лампы была взята одна из модификаций кюветы, предложенной авторами работы [9] и использовавшейся ими для изучения поглощения паров лития. Лампа представляет собой трубчатую печь из нержавеющей стали с охлаждаемыми окошками на торцах. В ее центральной части располагается отросток для щелочного металла и два патрубка с сапфировыми окошками на концах, позволяющие вести наблюдение перпендикулярно оси разряда. Температуры отростка и печи регулируются независимо и контролируются с помощью термопар. Внутренняя поверхность разрядной трубки выложена мелкоячеистой сеткой из нержавеющей стали, по которой литий, сконденсировавшийся в холодной части лампы, за счет капиллярного эффекта возвращается в нагретую зону. Перед каждой серией измерений, лампа откачивалась до давления $P \leq 10^{-6}$ тор и заполнялась гелием. Буферный газ препятствует попаданию лития на окошки и позволяет реализовать в нагретой зоне весьма однородный и протяженный столб паров щелочного металла. В этой области на расстоянии 10 см друг от друга располагались полые цилиндрические электроды. В трубке такой конструкции удается зажигать как разряд с полым катодом (катодом служит корпус печи, анодом — один из электродов), так и обычный тлеющий разряд между «холодными» электродами.

Питание разряда осуществлялось от генератора прямоугольных импульсов, характеризующихся следующими параметрами: частота повторения 50 Гц, длительность 30—300 мкс, крутизна фронтов $5 \cdot 10^6$ А/с, амплитуда тока — до 6 А.

Система оптической регистрации была собрана на базе дифракционного спектрографа ДФС-8-2 с фотоумножителем на выходе. Запертый в нормальном состоянии ФЭУ-79 отпирается прямоугольными импульсами напряжения от генератора Г5-7А. Сдвигая эти импульсы относительно тока через лампу, можно отпирать ФЭУ в разные моменты послесвечения и тем самым избежать перегрузки его последних диодов и предусилителя при регистрации спектральных линий, имеющих большую интенсивность в разряде. Сигнал с предварительного усилителя выводится на осциллограф (для удобства настройки) и параллельно на одноканальный временной сканирующий анализатор [8], с выхода которого подается для записи на двухкоординатный графопостроитель Н-306.

Методика эксперимента и результаты измерений

Эксперименты проводились при давлении гелия 40 тор и двух значениях разрядного тока в импульсе 2.0 и 4.0 А. Температура отростка с жидким литием варьировалась в пределах 780—850 К, что соответствует диапазону давлений насыщенных паров лития $5 \cdot 10^{-3}$ — $3 \cdot 10^{-2}$ тор [10]. Поскольку результаты, полученные при разных плотностях атомов лития, качественно сходны, в дальнейшем мы будем приводить данные лишь для температуры отростка 815 К ($P_{\text{нас}} = 1 \cdot 10^{-2}$ тор).

В процессе эксперимента измерялись плотность возбужденных атомов N^* , температура T_e и концентрация n_e электронов. Используемая аппаратура позволяла изучать временное поведение этих величин с разрешением не хуже 1 мкс.

Концентрации атомов, возбужденных на уровни $3s$, $3d$, $4s$ и $6s$, определялись по абсолютным интенсивностям соответствующих спектральных линий с учетом меняющейся во времени реабсорбции [6].

Самопоглощение приходилось учитывать только для линий $3s-2p$ и $3d-2p$,¹ да и то лишь в разряде и раннем послесвечении, когда плотность поглощающих атомов ($2p$) велика.

Сильная реабсорбция линий главной серии $2p-2s$ и $3p-2s$ не позволяет использовать метод абсолютных интенсивностей для определения заселенностей $2p$ и $3p$ состояний. Однако геометрия экспериментального прибора такова, что степень самопоглощения этих линий в процессе распада плазмы не изменяется, и поэтому ход их интенсивностей отражает относительное изменение во времени плотностей возбужденных атомов. Далее осуществлялась привязка полученных таким образом кривых к абсолютным значениям N^* в какой-либо одной точке. Абсолютная заселенность $2p$ состояния определялась по

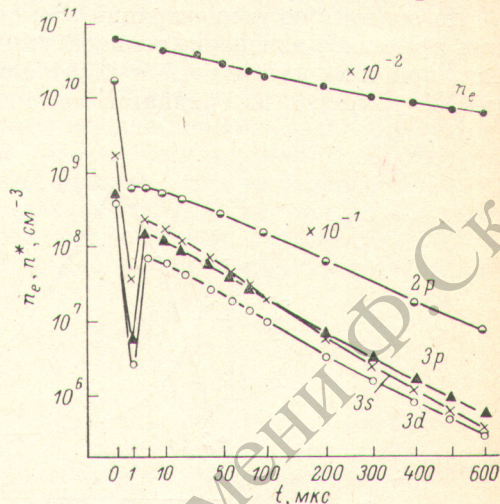
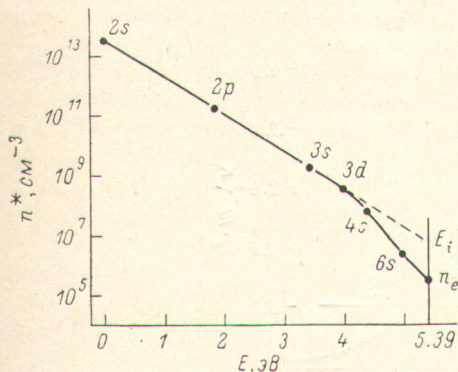


Рис. 1. Распределение заселенностей возбужденных состояний в разряде при токе 4 А.

Рис. 2. Временной ход концентраций электронов и возбужденных атомов в распадающейся плазме.

величине реабсорбции линии $3d-2p$ в разряде, а концентрация атомов, возбужденных на уровень $3p$, рассчитывалась по предварительно найденному значению $n^*(3d)$ в предположении равновесного, с температурой электронов распределения заселенностей по $3p$ и $3d$ состояниям. О правотности такого предположения свидетельствует то обстоятельство, что вероятность переходов между этими уровнями за счет электронного удара, оцененная по формулам работы [11], в наших условиях ($n_e \approx 5 \cdot 10^{12} \text{ см}^{-3}$) на несколько порядков превышает вероятности как радиационного распада, так и переходов, обусловленных столкновениями с атомами гелия.

Концентрация атомов в основном состоянии рассчитывалась по формуле Больцмана, исходя из температуры заселения T_s уровня $2p$, определяемой методом обращения линии $2p-2s$ в послесвечении, когда T_s попадает в рабочий диапазон температур ($T \leq 2800 \text{ К}$) источника сравнения — эталонной лампы СИ8-200У. Найденные таким образом плотности нейтральных атомов оказались в 1.5—2 раза меньше тех, что соответствуют давлению насыщенных паров лития при температуре отростка с жидким металлом. Это свидетельствует об отсутствии в системе жидкость—пар динамического равновесия.

Распределение заселенностей состояний $2s$, $2p$, $3p$, $3s$, $3d$, $4s$ и $6s$ в разряде при токе 4 А представлено на рис. 1.

Прямолинейность начального участка полученной зависимости, с одной стороны, указывает на равновесный характер распределения атомов по нижним возбужденным состояниям, а с другой, является косвенным подтверждением достоверности полученных значений $n^* = N^*/g$ (ведь на одну и ту же прямую легли экспериментальные точки, полученные разными методами. Концентрации на d и s уровнях определялись по абсолютной интенсивности спектраль-

¹ Ввиду малого расщепления энергетических уровней лития по квантовому числу j мы не разрешали тонкую структуру спектральных линий, регистрируя интегральную по компонентам ТС интенсивность.

ных линий, на $2p$ уровне — по величине реабсорбции линии $3d-2p$, плотность атомов в основном состоянии — методом обращения).

Наклон прямой позволяет определить температуру распределения в «блоке» нижних состояний в разрядных условиях. Она равна (4000 ± 200) К и (4100 ± 200) К для токов 4 и 2 А соответственно и в силу достаточно большой реабсорбции в разряде всех спектральных линий, начинающихся с низколежащих уровней, практически совпадает с температурой электронов.

Поведение во времени заселенностей уровней $2p$, $3s$, $3p$ и $3d$ для тока в разряде 4А представлено на рис. 2.

По отношению концентраций атомов в состояниях $3p$ и $3d$ удается проследить временное изменение температуры электронов в процессе распада плазмы. Так, при токе разряда 4А к десятой микросекунде она спадает от ~ 4000 К до (900 ± 50) К, а на тридцатой мкс практически сравнивается с температурой

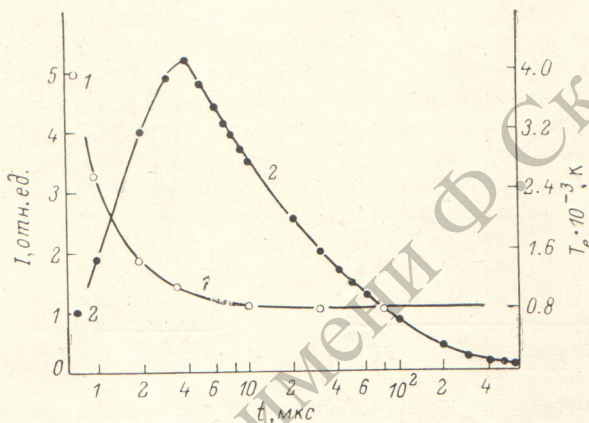


Рис. 3. Изменение температуры электронов (1) и интенсивности рекомбинационного континуума (2) в послесвечении литиевой плазмы.

Отдельно стоящими точками указаны значения T_e и I в разряде при токе 4 А.

тяжелых частиц и остается таковой на протяжении последующих 500 мкс (рис. 3, кривая 1).

Столь высокая скорость охлаждения электронов приводит к тому, что интенсивность рекомбинационного $2p$ -континуума, определяемая в общем случае выражением

$$I(\nu, n_e, T_e) = B n_e^2 T_e^{-3/2} q(\epsilon) \epsilon \exp\left(-\frac{\epsilon}{T_e}\right) h \nu d \nu, \quad (1)$$

сначала резко нарастает (кривая 2, рис. 3), а затем, когда T_e стабилизируется на уровне $T_{\text{газа}}$, «следит» за квадратом концентрации электронов. Последним обстоятельством мы и воспользовались для определения n_e . Температуру электронов по распределению интенсивности в континууме мы определить не смогли, так как за исключением лишь 50 \AA , вблизи его головы, на него накладываются системы молекулярных полос лития $C^1\Pi_u - X\Sigma_g^+$ и $D^1\Pi_u - X^1\Sigma_g^+$.

В распаде, где температура электронов низка и ионизацией можно пренебречь, уравнение баланса заряженных частиц принимает вид

$$\frac{dn_e}{dt} = -\alpha n_e^2 - D_a \left(\frac{C}{R}\right)^2 n_e, \quad (2)$$

здесь α — коэффициент объемной рекомбинации, D_a — коэффициент амбиполярной диффузии, R — радиус разрядной трубки.

Полагая, что превалирующим механизмом объемной нейтрализации зарядов в наших условиях является ударно-радиационная рекомбинация, а основным фактором, ограничивающим диффузию ионов на стенки разрядной трубки, их рассеяние на атомах гелия, мы оценили роль стеночных потерь в балансе заряженных частиц. При этом значения α брались из работы [12], а коэффи-

коэффициент амбиполярной диффузии рассчитывался на основе известной подвижности ионов лития в гелии [13]. Согласно проведенным оценкам при $T_e = 815$ К и $n_e = 1 \cdot 10^{12}$ см⁻³, диффузионные потери зарядов составляют менее 10% от рекомбинационных. Это дает возможность упростить выражение (2)

$$\frac{dn_e}{dt} \frac{1}{n_e} = -an_e. \quad (3)$$

Перестроив ту часть кривой спада интенсивности головы $2p$ -континуума, которая соответствует постоянной температуре электронов в масштабе $\sqrt{J} = f(t)$ и графически проинтегрировав полученную зависимость, нетрудно определить относительную скорость нейтрализации зарядов $(dn_e/dt) (1/n_e)$, а из нее, воспользовавшись данными работы [12], абсолютное значение плотности заряженных частиц. Такую операцию достаточно провести лишь для одного момента времени, пронормировав таким образом относительный ход n_e для $t \geq 30$ мкс. Далее, комбинируя распадные кривые для интенсивности континуума и температуры электронов, не составляет труда восстановить поведение n_e в течение первых тридцати микросекунд после обрыва разряда. В качестве примера на рис. 2 приведен временной ход концентрации электронов при токе в импульсе 4 А.

Обсуждение результатов

Как видно из рис. 2, начиная с некоторого момента времени на переходе $3p-3s$ наблюдается инверсность. Введем для удобства величину $\varphi = n^*(3p)/n^*(3s)$, представляющую собой отношение приведенных концентраций соответствующих возбужденных состояний, и проследим характер ее изменения по мере спада в послесвечении плотности электронов. Результаты, полученные для двух значений разрядного тока, представлены на рис. 4, а. Независимо от условий, в разряде приведенные заселенности $3p$ и $3s$ состояний сравниваются ($\varphi = 1$) при одной и той же концентрации заряженных частиц, равной примерно $2 \cdot 10^{12}$ см⁻³. Это значение критической для перехода $3p-3s$ плотности зарядов близко к теоретически рассчитанному авторами работы [3], где $n_e = 4 \cdot 10^{12}$ см⁻³. При дальнейшем уменьшении n_e величина φ продолжает расти.

Простейшее рассмотрение кинетики релаксации уровней $3p$ и $3s$ позволяет объяснить наблюдаемые на эксперименте закономерности. Оптические переходы в состояние $3s$ с расположенных выше уровней, за исключением $3p-3s$, либо запрещены правилами отбора, либо характеризуются крайне малыми по сравнению с переходом $3p-3s$ вероятностями [14, 15].

Согласно оценкам, проведенным нами с использованием полуэмпирических соотношений работы [14], эффективность заселения уровня $3s$ за счет тушения электронным ударом состояния $3p$ оказывается на 2-3 порядка выше, чем эффективность каналов $np-3s$ ($n \geq 4$), $nd-3s$ и т. п., а скорость его столкновительного девозбуждения в диапазоне $n_e \leq 5 \cdot 10^{12}$ см⁻³ ничтожно малой по сравнению с вероятностью радиационного распада.

Это позволяет нам в уравнениях баланса атомов в состояниях $3p$ и $3s$ учитывать заселение уровня $3s$ только за счет столкновительных и радиационных переходов с $3p$ и принимать во внимание лишь его ($3s$) излучательную дезактивацию.

Тогда плотность атомов на уровне $3s$ и величина φ запишутся в виде

$$N^*(3s) = g_{3s} n^*(3s) = \frac{g_{3p} n^*(3p) [A_{3p-3s} + n_e \langle v_e \sigma \rangle]}{A_{3s-2p}}, \quad (4)$$

$$\varphi = \frac{n^*(3p)}{n^*(3s)} = \frac{g_{3s} A_{3s-2p}}{g_{3p} [A_{3p-3s} + n_e \langle v_e \sigma \rangle]}. \quad (5)$$

Здесь $n^*(i)$ и g_i — приведенная заселенность i -ого уровня и его статистический вес соответственно, A_{i-j} — вероятность радиационного перехода $i-j$,

v_e — скорость электрона, σ — сечение столкновительного перехода $3p-3s$, знак $\langle \rangle$ означает усреднение по максвелловскому распределению.

При $n_e \rightarrow 0$ отношение заселенностей определяется вероятностями соответствующих радиационных переходов и, если воспользоваться для $A_{i,j}$ данными работы [14], $\varphi \rightarrow \varphi_{\max} = \frac{g_{3s} A_{3s-2p}}{g_{3p} A_{3p-3s}} \approx 3.1$.

При больших плотностях зарядов, когда столкновения со свободными электронами становятся определяющими в заселении и девозбуждении уровней

$3p$ и $3s$, между этими состояниями устанавливается бальмановское равновесие с температурой электронов. В этой ситуации $\varphi < 1$.

Переходной участок кривой $\varphi = f(n_e)$, соответствующий плотностям заряженных частиц в диапазоне $5 \cdot 10^{11} - 3 \cdot 10^{12} \text{ см}^{-3}$, содержит информацию, позволяющую оценить сечение столкновительного перехода $3p-3s$. Из (5) имеем

$$n_e \langle v_e \sigma \rangle = \frac{A_{3s-2p}}{3\varphi} - A_{3p-3s}. \quad (6)$$

Изображенная на рис. 4, б зависимость $\gamma = f(n_e)$, где $\gamma = (A_{3s-2p}/3\varphi) - A_{3p-3s}$, представляет собой прямую линию, наклон которой определяет константу скорости рассматриваемого

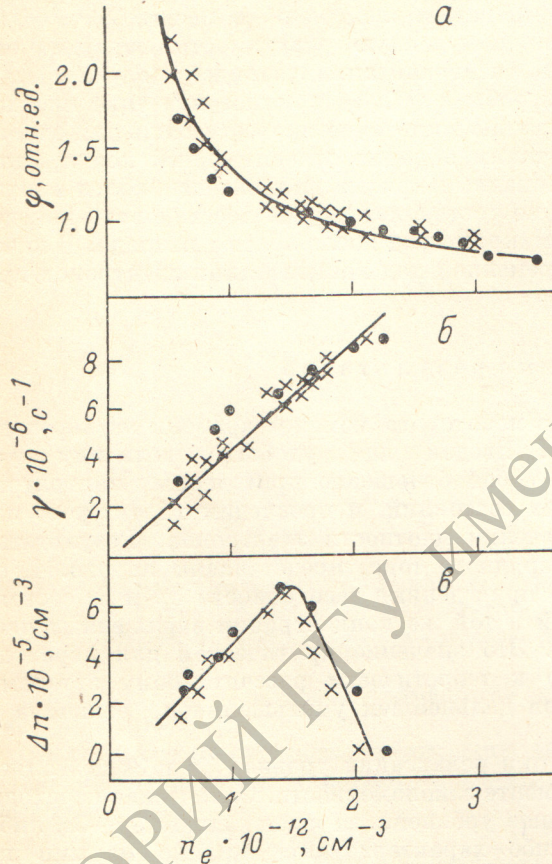


Рис. 4. Зависимости отношения приведенных заселенностей уровней $3p$ и $3s$ (а), скорости столкновительного перехода $3p-3s$ (б) и величины инверсии (в) от концентрации электронов, полученные при токах в импульсе $2A$ — (крестики) и $4A$ — (точки).

мого процесса: $K = \langle v_e \sigma \rangle = 4 \cdot 10^{-6} \text{ см}^2/\text{с}$. Отсюда, для сечения дезактивации уровня $3p$ электронным ударом, усредненного по максвелловскому распределению электронов с температурой 815 К , получаем $\sigma = 2.3 \cdot 10^{-13} \text{ см}^2$.

Погрешность в определении σ связана как с ошибками, присущими методу графического дифференцирования, применяемого нами для нахождения n_e , так и с неточностями используемых вероятностей радиационных переходов и значений коэффициентов объемной рекомбинации. Так, если воспользоваться результатами работы [16] (где для $T_e \geq 2000 \text{ К}$ рассчитаны значения α с учетом энергетической структуры атома Li), проэкстраполировав их в область низких температур ($T_e \approx 800 \text{ К}$), то концентрация электронов получится примерно в 2 раза больше, а сечение дезактивации уровня $3p$ соответственно в 2 раза меньше. Поэтому приведенное значение σ следует рассматривать как оценочное.

Прямая $\gamma = f(n_e)$ проходит через начало координат, что свидетельствует о пренебрежимо малой роли «перемешивания» уровней $3p$ и $3s$ за счет столкновений возбужденных атомов лития с тяжелыми частицами He и Li . Если принять во внимание, что в наших условиях концентрация нейтралов He примерно в 10^5 раз превышает плотность свободных электронов, то для верхней границы сечения «перемешивания» гелием вышеупомянутых возбужденных состояний получим значение $\sim 10^{-17} \text{ см}^2$.

Особый интерес представляет величина $\Delta n = n^*(3p) - n^*(3s)$, характеризующая усилительные свойства среды. Ее изменение с концентрацией электронов для исследованных режимов представлено на рис. 4, в. Независимо от начальных условий максимальное значение Δn достигается при плотностях заряженных частиц в распаде $n_e \approx 1.4 \cdot 10^{12} \text{ см}^{-3}$. При больших концентрациях электронов затрудняется возникновение инверсии вследствие «перемешивания» уровней $3p$ и $3s$ электронным ударом, а при меньших — величина Δn снижается в силу ослабления рекомбинационного потока.

Рассчитанный по формулам, приведенным в работе [1], погонный коэффициент усиления на переходе $3p-3s$ ($\lambda = 2.69 \text{ мкм}$) для оптимальных условий, реализуемых в наших экспериментах ($\Delta n = \Delta n_{\text{max}} = 7 \cdot 10^5 \text{ см}^{-3}$), оказывается весьма мал $\chi \approx 5 \cdot 10^{-4} \text{ см}^{-1}$.

Литература

- [1] Л. И. Гудзенко, С. И. Яковленко. Плазменные лазеры. «Атомиздат», М., 1978.
- [2] Н. Д. Моргулис, И. Н. Полушкин, В. И. Лукашенко. В сб.: Electricity from MHD, 1, 287, JAEA, Vienna, 1968.
- [3] Б. Ф. Гордиец, Л. И. Гудзенко, Л. А. Шелепин. ЖЭТФ, 55, 942, 1968.
- [4] Л. И. Гудзенко, В. А. Евстигнеев, С. С. Филиппов, С. И. Яковленко. ТВТ, 12, 964, 1974. Препринт № 36 Института прикладной математики АН СССР, М., 1973.
- [5] Н. Д. Моргулис, И. Н. Полушкин, А. И. Кравченко, Е. Я. Коган, О. И. Фисун. Опт. и спектр., 30, 597, 1971.
- [6] Д. Я. Дудко, Ю. П. Корчевой, В. И. Лукашенко. Опт. и спектр., 34, 33, 1973.
- [7] E. E. Antonov, Yu. P. Korchevov, V. I. Lukashenko. In: Contributed Papers of the 11-th ICPIG, 33, Prague, 1973.
- [8] В. И. Лукашенко. В кн.: Вопросы МГД преобразования энергии, вып. 1, 124. «Наукова Думка», Киев, 1974.
- [9] C. R. Vidal, J. Sorer. J. Appl. Phys., 40, 3370, 1969.
- [10] Ф. Розбери. Справочник по вакуумной технике и технологии. «Энергия», М., 1972.
- [11] И. Бейгман, Л. Вайнштейн. Изв. АН СССР, сер. физ., 27, 1018, 1963.
- [12] D. K. Bates, A. Kingston, R. W. P. McWhirter. Proc. Roy. Soc., A270, 1955, 1962.
- [13] A. M. Tundall. The Mobility of Positive Ion in Gases. Cambridge, 1938.
- [14] W. L. Wiese, M. W. Smith, U. M. Glennon. Atomic Transition Probabilities, v. 1. Nat. Bur. Stand., Washington, 1966.
- [15] Э. М. Андерсон, В. А. Зилитис. Опт. и спектр., 16, 382, 1964.
- [16] А. В. Потапов, Л. Е. Цветкова. ТВТ, 9, 182, 1971.

Поступило в Редакцию 7 января 1981 г.