

УДК 537.525

**МЕХАНИЗМ ИМПУЛЬСНОЙ СВЕРХСВЕТИМОСТИ
НА ЗЕЛЕНОЙ ЛИНИИ ТАЛЛИЯ В РАЗРЯДЕ
В ПАРАХ ИОДИСТОГО ТАЛЛИЯ**

A. A. Исаев, M. A. Казарян и Г. Г. Петраш

Экспериментально изучены условия существования и свойства импульсной сверхсветимости на линии таллия 5350 Å (переход $7^2S_{1/2} \rightarrow 6^2P_{3/2}$) в разряде в парах иодистого таллия. Проведены фотоэлектрические исследования спектра и временных характеристик спонтанного и стимулированного излучения. Эксперимент проведен в широком диапазоне изменения разрядных условий. Обнаружено, что сверхсветимость существует как в парах чистого иодистого таллия, так и в смеси с благородными газами. Определены оптимальные условия сверхсветимости. На основании экспериментальных данных сделан вывод, что импульсная инверсия на указанной линии таллия в парах иодистого таллия возникает в результате диссоциации молекулы электронным ударом с преимущественным заселением уровня $7^2S_{1/2}$.

В работе [1] сообщалось о наблюдении импульсной сверхсветимости на зеленой линии таллия (5350 Å, переход $7^2S_{1/2} \rightarrow 6^2P_{3/2}$) в разряде в парах иодистого таллия с некоторыми буферными газами. Было проведено предварительное исследование свойств сверхсветимости и высказано предположение, что в этом случае реализуется новый механизм образования инверсии — диссоциация молекулы электронным ударом с преимущественным заселением уровня таллия $7^2S_{1/2}$. Полученные в [1] данные не позволяли, однако, однозначно исключить другие механизмы. В частности, не было данных о поведении во времени сверхсветимости и спонтанного излучения разряда. В настоящей работе (с целью выяснения механизма образования инверсии) проведено более детальное исследование сверхсветимости в этом разряде. Основное внимание уделено изучению сверхсветимости и спонтанных линий с хорошим разрешением по времени.

Эксперимент

Экспериментальная установка мало отличалась от установки [1]. Разрядные трубки из кварца имели рабочую часть длиной 200 мм и внутренним диаметром 1.3 мм. Иодистый таллий закладывался в отросток или в расширение в середине рабочей части трубки. Ниже приводится температура, измеренная непосредственно около отростка. Зависимость давления паров иодистого таллия от температуры взята из [2]. В некоторых опытах вся трубка с окнами и электродами помещалась в печь, в других — в печь помещалась только рабочая часть трубки, а окна и электроды были вне зоны нагрева. Применялись инертные буферные газы. Был также проведен эксперимент с отпаянной трубкой с парами TlJ без буферных газов. Импульсный разряд в трубке возбуждался с помощью импульсного кабельного трансформатора [1, 3]. Частота повторения импульсов варьировалась от нескольких герц до 1 кгц. Резонатор как таковой отсутствовал. Излучение разрядной трубки, за которой стояло обычно алюминированное зеркало, с торца фокусировалось на щель спектрометра ДФС-12. Юстировка зеркала и всей системы проводилась

по сверхсветимости на линии 6143 Å неона. Спектр в видимой области регистрировался фотоумножителем ФЭУ-36, в инфракрасной — ФЭУ-28. Сигнал с фотоумножителя подавался на вход усилителя осциллографа С1-11. Временное разрешение системы регистрации составляло 7—10 нсек. Точность измерения длины волны по оценке 0.5 Å.

Вначале эксперименты проводились в условиях, когда вся разрядная трубка вместе с окнами и электродами помещалась в печь. В этих условиях в области температур 370—440° С наблюдалась сверхсветимость на линии таллия 5350 Å со следующими инертными газами в качестве буферных Не, Ne, Ar, Xe. Мощность сверхсветимости увеличивалась в последовательности Не, Ne, Ar, Xe примерно как числа 1 : 10 : 20 : 30. Оптимальное давление буферного газа составляло для гелия — 10, неона — 6, аргона — 1.3 и ксенона — 0.7 мм рт. ст. Был также проведен эксперимент в разряде чистых паров иодистого таллия без буферного газа. Для этого трубка с иодистым таллием была тщательно обезгажена при рабочей температуре и затем отпаяна при давлении 10⁻⁵ мм рт. ст. В отпаянной трубке в парах чистого иодистого таллия сверхсветимость на линии 5350 Å наблюдалась в области температур 370—390° С. Зеркало, установленное за трубкой, не сказывалось на мощности сверхсветимости. Этот эксперимент показал, что присутствие буферного газа не обязательно для получения сверхсветимости. Однако мощность сверхсветимости без буферного газа была заметно меньше.

При нагреве всей трубы в экспериментах возникали дополнительные трудности, связанные с разрушением электродов и пробоями с электродов на печь. Поэтому большая часть опытов проводилась с нагревом только рабочей части трубы. При нагревании рабочей части разрядной трубы сверхсветимость на линии таллия наблюдалась со всеми упомянутыми выше инертными буферными газами в области температур 430—490° С, а максимальная мощность для всех газов достигалась с точностью 10° С при одной и той же температуре. Область температур, при которых существует сверхсветимость, и температура, соответствующая максимальной мощности сверхсветимости, отличаются от тех значений, которые наблюдаются при нагреве всей трубы. Эти отличия связаны, судя по всему, с тем, что при нагреве средней части трубы существует диффузионный поток и градиент плотности рабочего вещества вдоль трубы.

Поэтому для достижения той же средней плотности иодистого таллия требуется нагреть среднюю часть трубы до более высоких температур, чем в том случае, когда трубка нагревается целиком. Из этих результатов можно прийти к заключению, что максимальная мощность сверхсветимости достигается при определенной плотности иодистого таллия, составляющей примерно $5 \cdot 10^{15}$ см⁻³, что соответствует температуре 380° С.

Зависимость мощности сверхсветимости от давления буферного газа для температуры трубы, соответствующей максимальной мощности сверхсветимости, приведена на рис. 1. Область существования сверхсветимости по давлению буферного газа не одинакова для разных газов: она сужается при переходе от неона к ксенону. Максимум мощности сверхсветимости достигается для неона при 6, аргона — 1.3 и ксенона — 0.7 мм рт. ст. Мощности сверхсветимости в максимуме для газов Xe, Ar, Ne относятся приблизительно как числа 3 : 2 : 1. Постановка зеркала за трубкой и в этом случае не сказывалась на мощности сверхсветимости ни при каких условиях опыта.

Интересно отметить, что при соответствующем выборе давления буферного газа можно было одновременно наблюдать сверхсветимость как на линиях буферного газа (неона — 6143, ксенона — 9799 и 9045 Å), так и на линии таллия 5350 Å. Мощность сверхсветимости на линиях буферных газов уменьшалась с ростом температуры, и при высоких температурах сверхсветимость на этих линиях пропадала. Так, например, при давлении неона 1.5 мм рт. ст. сверхсветимость на линии неона 6143 Å

существовала в области температур 20—380° С. В этих же условиях сверхсветимость на линии таллия 5350 Å наблюдалась в области 370—440° С.

Спектр и временные характеристики спонтанного и стимулированного излучения лазерных трубок исследовались фотоэлектрически в области спектра 3000—6000 Å и в интервале температур 360—520° С, т. е. в несколько более широком, чем интервал существования сверхсветимости на линии 5350 Å. В этих условиях наблюдались линии, принадлежащие к спектрам ІІ, ІІІ, ТІІІ, ТІІІІ. Наблюдалась также линия 4152 Å, которую предположительно приписывают молекуле TlJ [4]. Линии ІІ не наблюдались. При тех длинах волн, на которых должны существовать сильные линии ІІ, сигнал не превышал уровня помех (фон) (рис. 2). Более подробно исследовался спектр с буферным газом неоном. Были изучены временные характеристики следующих спонтанных линий:

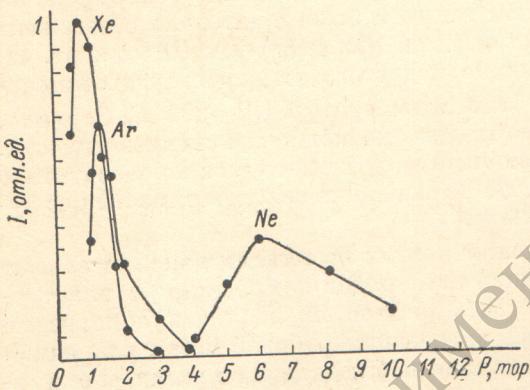


Рис. 1. Зависимость мощности сверхсветимости на линии 5350 Å атома таллия от давления буферного газа (температура 460° С).

$7^2S_{1/2} \rightarrow 6^2P_{1/2}$) начинается с того же уровня, что и линия 5350 Å. Она служит для характеристики заселения уровня $7^2S_{1/2}$. Линии 3529 Å ($6^2D_{3/2} \rightarrow 6^2P_{3/2}$) и 3519 Å ($6^2D_{5/2} \rightarrow 6^2P_{3/2}$) начинаются с уровня $6^2D_{5/2}$ (резонансный) и $6^2D_{3/2}$. Они кончаются на том же метастабильном уровне, что и линия 5350 Å. Заранее нельзя было исключить возможность инверсии на этих линиях. Наконец, линия 3229 Å соответствует переходу с более высокого уровня $8^2S_{1/2}$.

Форма и длительность импульсов спонтанного излучения на линиях ТІІ 5350, 3775, 3529, 3519 Å остается неизменной в исследованном интервале температур. Длительность импульсов спонтанного излучения на линиях, принадлежащих ионам ТІІІ и ІІІ, увеличивается, их форма изменяется. На рис. 2 приведены осцилограммы вышеупомянутых линий при температуре 440° С (сверхсветимость существует). Давление буферного газа неона составляло 10 мм рт. ст. Скорость развертки 20 нсек./см. Из приведенных осцилограмм видно, что все спонтанные линии начинают светиться с точностью эксперимента одновременно. Импульс сверхсветимости на линии 5350 Å возникает на переднем фронте спонтанной линии и имеет длительность, значительно меньшую, чем длительность спонтанного излучения. Длительность импульса сверхсветимости на осциллографах 5—7 нсек. по полувысоте. Применение специального фотумножителя и осциллографа И2-7 позволило показать, что длительность сверхсветимости не более 3 нсек. по полувысоте. Отметим также, что сверхсветимость на переходах неона и ксенона в пределах точности опыта совпадает по времени со сверхсветимостью на зеленой линии таллия 5350 Å.

Для выяснения механизма инверсии представляло интерес сравнить характер изменения мощности сверхсветимости и интенсивности спонтан-

5496, 5464 Å ІІІ; 3229, 3529, 3519, 3775 Å ТІІ; 5152, 5078 Å ТІІІ. Для характеристики свечения неона регистрировались линии 6143 и 5400 Å NeI. Выбранные линии относятся к наиболее интенсивным в условиях опыта. В связи с этим их легко было выделить и измерить. Отметим также, что они не участвуют в предполагаемом процессе фотодиссоциации молекулы TlJ на Tl ($2^2S_{1/2}$) и J ($2^2P_{3/2}$). Таким образом, эти линии могут служить для характеристики самого разряда.

Из линий таллия (рис. 3) резонансная линия 3775 Å (переход

7 $^2S_{1/2} \rightarrow 6^2P_{1/2}$) начинается с того же уровня, что и линия 5350 Å. Она служит для характеристики заселения уровня 7 $^2S_{1/2}$. Линии 3529 Å ($6^2D_{3/2} \rightarrow 6^2P_{3/2}$) и 3519 Å ($6^2D_{5/2} \rightarrow 6^2P_{3/2}$) начинаются с уровня 6 $^2D_{5/2}$ (резонансный) и 6 $^2D_{3/2}$. Они кончаются на том же метастабильном уровне, что и линия 5350 Å. Заранее нельзя было исключить возможность инверсии на этих линиях. Наконец, линия 3229 Å соответствует переходу с более высокого уровня 8 $^2S_{1/2}$.

Форма и длительность импульсов спонтанного излучения на линиях ТІІ 5350, 3775, 3529, 3519 Å остается неизменной в исследованном интервале температур. Длительность импульсов спонтанного излучения на линиях, принадлежащих ионам ТІІІ и ІІІ, увеличивается, их форма изменяется. На рис. 2 приведены осцилограммы вышеупомянутых линий при температуре 440° С (сверхсветимость существует). Давление буферного газа неона составляло 10 мм рт. ст. Скорость развертки 20 нсек./см. Из приведенных осцилограмм видно, что все спонтанные линии начинают светиться с точностью эксперимента одновременно. Импульс сверхсветимости на линии 5350 Å возникает на переднем фронте спонтанной линии и имеет длительность, значительно меньшую, чем длительность спонтанного излучения. Длительность импульса сверхсветимости на осциллографах 5—7 нсек. по полувысоте. Применение специального фотумножителя и осциллографа И2-7 позволило показать, что длительность сверхсветимости не более 3 нсек. по полувысоте. Отметим также, что сверхсветимость на переходах неона и ксенона в пределах точности опыта совпадает по времени со сверхсветимостью на зеленой линии таллия 5350 Å.

Для выяснения механизма инверсии представляло интерес сравнить характер изменения мощности сверхсветимости и интенсивности спонтан-

ных линий в зависимости от условий опыта. По этому поводу можно сказать, что мощность сверхсветимости гораздо резче зависит от условий опыта, чем интенсивность спонтанного излучения. Из анализа полученных осцилограмм можно было найти, что в указанной области температур, включающей всю область существования сверхсветимости на линии 5350 Å, интенсивность спонтанных линий ТII вначале с ростом температуры увеличивается, а затем рост замедляется. Интенсивность спонтанного излучения на линиях ионов иода и таллия с ростом температуры сначала растет, затем остается примерно неизменной, а потом падает при температуре около 510° С.

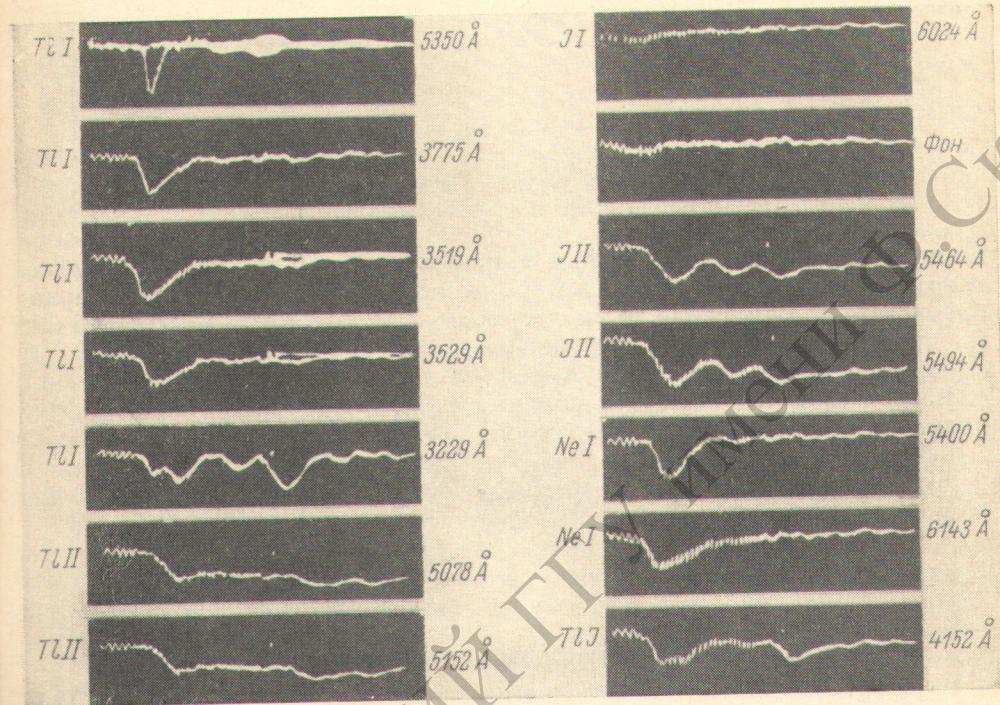


Рис. 2. Осцилограммы сверхсветимости на линии 5350 Å атома таллия и линий спонтанного излучения при температуре 440° С.

Давление буферного газа неона 10 мм рт. ст. Масштаб времени — осциллограф на рисунке соответствует примерно 200 нсек.

Форма импульса для ионных линий более сложна, чем для атомных; они имеют два максимума, соотношение амплитуд между которыми изменяется с ростом температуры. Сверхсветимость совпадает по времени с фронтом первого максимума. С ростом температуры первый максимум уменьшается по отношению ко второму. В области температур, где существует сверхсветимость на линии 5350 Å, интенсивность ионных линий изменяется мало. Для примера зависимость интенсивности спонтанного излучения на линии 5464 Å JII и мощности сверхсветимости на линии 5350 Å TII от температуры показана на рис. 4.

Интенсивность спонтанного излучения на линиях 5494 и 5464 Å JII изучалась также в зависимости от рода буферного газа. Эта зависимость показана на рис. 5 в сравнении с зависимостью мощности сверхсветимости на линии 5350 Å. Как видно из рис. 5, при изменении буферного газа мощность сверхсветимости резко изменяется, а интенсивность спонтанного излучения меняется мало.

Кроме исследования сверхсветимости на парах иодистого таллия, в работе была предпринята попытка получить сверхсветимость с аналогичной молекулой бромистого таллия. Эксперименты проводились с той же

экспериментальной установкой и с разрядной трубкой той же конструкции. В качестве буферных газов использовались гелий, неон, аргон и

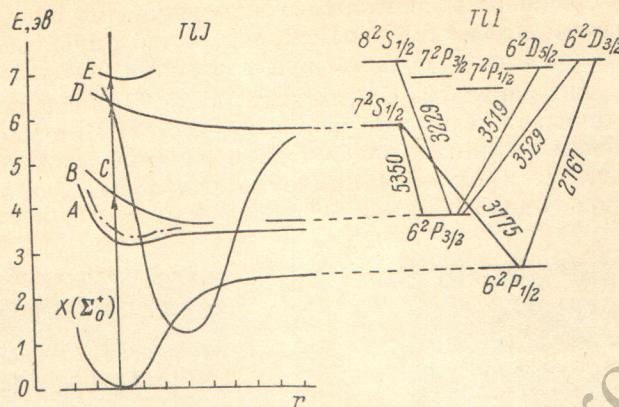


Рис. 3. Схема уровней энергии и переходов атома таллия.
Кривые потенциальной энергии иодистого таллия.

ксенон. Их давление изменялось в пределах 0,5—6 мм рт. ст. Трубка нагревалась до температуры 520° С, что соответствует давлению паров бромистого таллия около 10 мм рт. ст. Спектр излучения разрядной трубы исследовался фотоэлектрически в области 3000—6500 Å. Наиболее сильные линии излучения принадлежали ТII

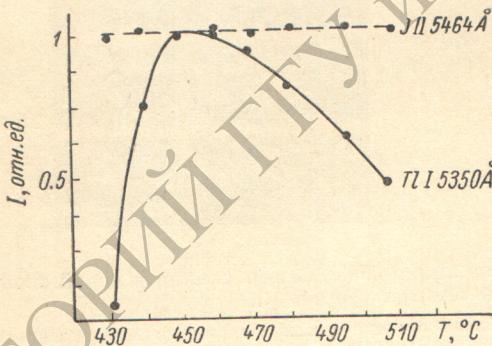


Рис. 4. Зависимость мощности сверхсветимости и спонтанного излучения на линиях J II от температуры (давление буферного газа неона 10 мм рт. ст.).

(3775 и 5350 Å). Никаких линий сверхсветимости обнаружено не было, несмотря на широкий диапазон изменения условий опыта.

Отсутствие сверхсветимости в парах TlBr может быть результатом различия положений кривых потенциальной энергии между молекулами иодистого и бромистого таллия. В частности, по-другому может заселяться метастабильный уровень таллия.

Обсуждение результатов

Схема потенциальных кривых молекулы иодистого таллия [4, 5] и схема уровней атома таллия [6] представлены на рис. 3. Необходимо рассмотреть различные возможные пути создания инверсии на указанном

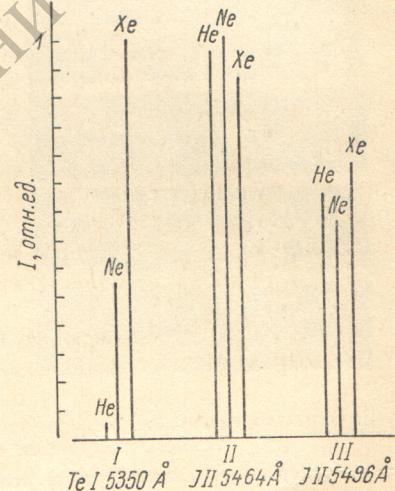


Рис. 5. Относительная мощность сверхсветимости и линий спонтанного излучения J II при различных буферных газах гелия, неона, ксенона.

Температура 480° С, давление буферного газа He — 6, Ne — 6, Xe — 0.66 мм рт. ст.

переходе атома таллия. Прежде всего можно предположить, что в трубке, кроме иодистого таллия, был металлический таллий, и генерация наблюдалась в парах таллия. Сверхсветимость в парах таллия наблюдалась ранее [7] на той же линии 5350 Å.

В настоящих опытах таллий в рабочую трубку не вводился. Не исключено, что он мог там образоваться в результате разложения молекулы TlJ в разряде. Однако для создания заметного давления паров таллия требуются значительно более высокие температуры, чем в настоящих опытах. В [7] сверхсветимость в парах таллия наблюдалась начиная с температуры 600° С. При рабочих температурах настоящего эксперимента давление паров таллия пренебрежимо мало [8]. Другим путем появления атомов таллия в разряде может служить термическое разложение молекулы TlJ в более горячей центральной зоне разряда. Такой механизм свечения атомарных линий таллия предполагается для газоразрядных ламп с добавками иодидов, в частности с добавками TlJ [9]. При этом предполагается, что температура стенки разрядной трубы соответствует давлению паров TlJ около 1 мм рт. ст., а в центральной зоне разряда температура настолько выше, что происходит термическое разложение молекулы на атомы. Предполагается также, что атомы таллия не осаждаются на стенках трубы, так как за время диффузии к стенке они успевают вновь рекомбинировать с атомами иода. В условиях нашего эксперимента такой механизм также не может реализоваться. В трубке малого диаметра, работающей с небольшой частотой повторения импульсов, градиент температуры по диаметру должен быть пренебрежимо мал. В связи с этим при наших рабочих температурах не может быть термического разложения иодистого таллия. Об этом же свидетельствует отсутствие линии JI. Потенциалы возбуждения линий иода и таллия довольно близки, так что при диссоциации молекулы на таллий и иод в основных состояниях должен был наблюдаться спектр свечения атомарного иода.

Остается предположить, что уровни атома таллия заселяются в процессе диссоциации молекулы иодистого таллия из возбужденных электронных состояний. В принципе возможна как фотодиссоциация молекулы излучением, возникающим в разряде, так и диссоциация электронным ударом.

Рассмотрим возможность фотодиссоциации с образованием атома таллия в состоянии $7^2S_{1/2}$. Известно, что за фотодиссоциацию в это состояние ответственна область поглощения молекулы TlJ примерно от 1900 до 2100 Å с максимумом около 2000 Å [10]. Из линий, которые могут присутствовать в разряде в парах иодистого таллия, в том числе и с буферными газами, в эту область попадают сильные линии JI, JII, ArIII. Эксперимент с отпаянной трубкой показал, что присутствие буферного газа не обязательно для получения сверхсветимости на линии таллия 5350 Å. Поэтому остается рассмотреть линии JI и JII. Как упоминалось, в эксперименте линии JI вообще обнаружить не удалось. Поэтому мало вероятно, что они могли быть и в области около 2000 Å. Что касается линий JII, то они легко обнаруживаются в условиях нашего опыта. Однако и они вряд ли могут быть ответственны за возбуждение линии 5350 Å, так как их поведение не обнаруживает никакой корреляции с поведением сверхсветимости и линий спонтанного излучения с уровня $7^2S_{1/2}$. Как видно из осцилограммы (рис. 2), длительность спонтанного излучения с уровня $7^2S_{1/2}$ значительно меньше, чем длительность свечения линий JII. Это свидетельствует о том, что уровень таллия $7^2S_{1/2}$ заселяется не под действием излучения на линиях JII. Кроме того, из рис. 4 видно, что при изменении температуры мощность сверхсветимости меняется довольно резко, в то время как в том же температурном интервале интенсивность линий практически не меняется.

При работе с буферными газами увеличение мощности сверхсветимости также нельзя приписать действию фотодиссоциации. В частности, мощность сильно зависит от сорта буферного газа и для ксенона примерно вдвое

больше, чем для аргона. Между тем у ксенона в области спектра 2000 Å вообще отсутствуют сильные линии, в то время как у аргона они есть. Заметим также, что интенсивность линий II мало зависит от рода буферного газа. Таким образом, мы приходим к выводу, что хотя механизм фотодиссоциации в принципе вполне может привести к созданию инверсии на линии 5350 Å, в реальных условиях нашего эксперимента эта возможность не реализуется из-за отсутствия сильных линий в нужной области спектра.

Остается предположить заселение уровня таллия $7^2S_{1/2}$ в процессе диссоциации электронным ударом. Этот механизм хорошо согласуется со всеми наблюдаемыми на опыте фактами. Действительно, из расположения потенциальных кривых видно, что в результате действия принципа Франка—Кондона электронным ударом, так же как и фотовозбуждением, молекула TlI должна в основном диссоциировать с образованием атомов таллия на уровне $7^2S_{1/2}$ [11, 12]. Зависимость мощности сверхсветимости от условий эксперимента и от рода буферного газа также нетрудно объяснить изменением условий в плазме, в частности изменением температуры электронов. Таким образом, анализ результатов приводит к выводу, что основной механизм образования инверсии на линии 5350 Å таллия (переход $7^2S_{1/2} \rightarrow 6^2P_{3/2}$) в разряде в парах иодистого таллия (как с буферными газами, так и без них) состоит в диссоциации молекул иодистого таллия электронным ударом с преимущественным заселением уровня $7^2S_{1/2}$.

Литература

- [1] А. А. Исаев, Г. Г. Петраш. Письма в ЖЭТФ, 7, 204, 1968.
- [2] Справочник химика. Л., 1962.
- [3] А. С. Насибов, А. А. Исаев, В. М. Каслин, Г. Г. Петраш. ПТЭ, 4, 232, 1967.
- [4] А. Н. Тегепин. Phys. Zs. Sowjet., 2, 377, 1932.
- [5] Données spectroscopiques concernant les molécules diatomiques, Paris, 1951.
- [6] С. Э. Фриш. Оптические спектры атомов. Физматгиз, М., 1963.
- [7] А. А. Исаев, П. И. Ищенко, Г. Г. Петраш. Письма в ЖЭТФ, 6, 619, 1967.
- [8] А. Н. Несмейнов. Давление пара химических элементов. Изд. АН СССР, М., 1961.
- [9] Г. Н. Рожлин. Газоразрядные источники света. Изд. «Энергия», М., 1966.
- [10] N. M. Frank. Sow. Phys., 2, 319, 1932: Тр. ГОИ, вып. 87, 1933.
- [11] Г. Месси, Е. Бархоп. Электронные и ионные столкновения. ИЛ, М., 1958.
- [12] В. А. Дудкин, Г. Л. Андреева, В. И. Малышев, В. Н. Сокрин. Опт. и спектр., 19, 177, 1965.

Поступило в Редакцию 28 октября 1970 г.