

УДК: 535.37; 621.386

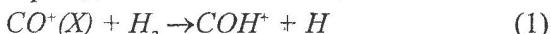
M. У. ХАСЕНОВ

О ВОЗМОЖНОСТИ КВАЗИНПЕРЫВНОЙ ГЕНЕРАЦИИ НА ПЕРВОЙ ОТРИЦАТЕЛЬНОЙ СИСТЕМЕ СО I. КИНЕТИКА ДЕЗАКТИВАЦИИ CO⁺(B)

(Представлена академиком НАН РК Э.Г. Босс)

Статья посвящена исследованию возможности квазинпрерывной генерации в УФ-области спектра на B-X переходе CO⁺. Исследованы спектры люминесценции смесей с CO при возбуждении α -частицами ^{210}Po . Константы скорости тушения определены из зависимостей интенсивности первой отрицательной системы CO от парциального давления газов в смеси. При анализе экспериментальных данных учитывалось заселение верхнего уровня за счет столкновений молекул CO с ионами He₂⁺. Константа скорости тушения CO⁺(B_{v=0}) неоном ($1,5 \cdot 10^{-11} \text{ см}^{-3} \text{ с}^{-1}$) на два порядка больше, чем для гелия, интенсивность полос 1⁻ системы CO в смеси Ne-CO в 2,5 раза меньше, чем в смеси He-CO.

В [1] впервые создан эффективный (КПД~2%) квазинпрерывный лазер высокого давления на первой отрицательной системе азота. Представляет интерес исследование возможности создания квазинпрерывного лазера УФ-диапазона на первой отрицательной системе CO, так как для перехода 0-1 ($\lambda=230 \text{ нм}$) квантовый КПД составляет 12,7% [2], а эффективность заселения верхнего лазерного уровня B² Σ^+ велика [3]. Высокими значениями константы скорости расселения нижнего лазерного уровня X² Σ^+_g обладают [4]: H₂ ($k=2,0 \cdot 10^{-9} \text{ см}^3 \text{ с}^{-1}$), D₂ ($7 \div 15 \cdot 10^{-10}$), Kr ($2,2 \cdot 10^{-9}$). Следует отметить, что образующиеся в процессе с переходом тяжелой частицы:



ионы COH⁺ (аналогично COD⁺) не поглощают излучение первой отрицательной системы CO [5]. Следовательно, достаточно ~3 Тор водорода или криптона, чтобы скорость расселения нижнего лазерного уровня на порядок превысила скорость спонтанного распада верхнего уровня ($v=1,92 \cdot 10^7 \text{ с}^{-1}$ [5, 6]). Тогда возможность создания квазинпрерывного лазера на B-X переходе CO⁺ определяется соотношением скоростей расселения верхнего и нижнего лазерных уровней молекулами H₂, D₂ и атомами Kr.

В настоящей работе исследовались спектры люминесценции газовых смесей с окисью угле-

рода при возбуждении α -частицами полония-210. Экспериментальная установка описана в [7]. В камере из нержавеющей стали располагались 18 источников с ^{210}Po с суммарной активностью ~7·10⁹ Бк. Объем области возбуждения составлял 40 см³, удельная мощность накачки ~5·10⁻⁵ Вт/см³ (при давлении основного газа гелия 4 атм). Спектры излучения в области 200-830 нм анализировались с помощью монохроматора SPM-2 и ФЭУ-106, работающего в режиме счета фотонов. Использовались Ne чистоты 99,996%, He (99,99%), CO (99,5%), Kr (99,999%), N₂ (99,998%). Дейтерий ($\leq 0,2\%$ примесей) и технический водород пропускали через ловушки с силикагелем и активной медью, баллоны с этими газами при напуске охлаждали жидким азотом.

Спектры излучения. Ne+CO. В спектре излучения смеси Ne+CO в области 200÷300 нм преобладают полосы первой отрицательной системы CO, в более длинноволновой области наблюдались полосы системы Бальде-Джонсона и кометно-хвостовой системы CO, слабые полосы CO₂⁺, N₂⁺. В смесях Ne-CO и Ne-CO отношения интенсивностей полос примерно соответствуют отношениям вероятностей переходов с соответствующего колебательного уровня (табл. 1). Вероятности переходов рассчитывались по формулам и данным, приведенным в [6, 8].

Таблица 1. Вероятности (10^5 с^{-1}) и длины волн (нм, [9]) переходов CO^+ ($B^2\Sigma_{u,v}^+ \rightarrow X^2\Sigma_{g,v}^+$).

$v' \backslash v''$	0	1	2	3	4	5	6	7
0	120,8	56,7	12,7	1,9	0,2			
	219,0	230,0	241,9	255,0	269,4			
1	91,2	14,3	53,0	26,2	6,4	1,0	0,1	
	211,2	221,4	232,5	244,6	257,8	272,2	288,2	
2	40,1	76,9	2,4	26,2	30,9	12,4	9,9	9,5
	204,2	213,8	224,0	235,3	247,4	260,7	275,3	291,3

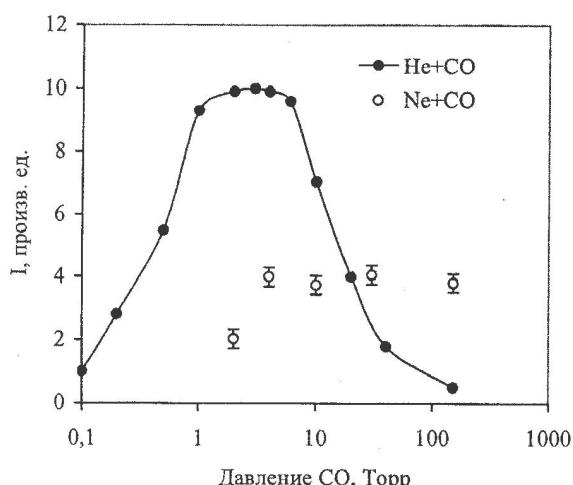


Рис. 1. Зависимость интенсивности на 230 нм от давления CO в смесях He (4 атм)+CO и Ne (1,22 атм)+CO.

На рис.1 показана зависимость интенсивности полосы 230 нм от давления CO в смеси He (4,0 атм)+CO. Максимальная интенсивность излучения достигается при давлении CO, равном 1÷6 Торр. Зависимость интенсивности люминесценции от давления CO указывает на наличие заметного тушения $\text{CO}^+(B)$ в двух и (или) трёхчастичных столкновениях с CO и He.

Ne+CO. Интенсивность полос 1¹ системы CO в смеси Ne (1,22 атм) + CO (4,0 Торр) примерно в 2,5 раза меньше (см. рис.1) интенсивности полос в смеси He (4,0 атм)+CO (4,0 Торр), давление смесей подбиралось из условия одинаковой длины пробега α -частиц и, соответственно, одинаковой мощности накачки смесей. Кроме того, в смеси Ne+CO отсутствуют B-X переходы CO^+ с уровней $v' > 0$.

Тушение B-состояния CO^+ . He+CO. Константы скорости тушения $\text{CO}^+(B)$ определялись из зависимости интенсивности люминесценции первой отрицательной системы CO от парциального давления газов в смеси. При анализе экспериментальных данных будем, аналогично случаю смесей He + N₂ [10], учитывать заселение верх-

него уровня только за счет столкновений молекул CO с ионами He_2^+ , пренебрегая вкладом метастабилей He^* . Это связано со следующими обстоятельствами:

1) при накачке гелия ионизирующим излучением на каждый возбужденный атом образуется 2-3 иона [11];

2) в гелии высокого давления высоковозбужденные атомы конвертируют в молекулярные ионы вследствие ассоциативной ионизации $\text{He}^{**} + \text{He} \rightarrow \text{He}_2^+ + e$ (константа скорости $\leq 2 \cdot 10^{-11} \text{ см}^3 \text{ с}^{-1}$) или в димеры He_2^* [12], а не релаксируют в метастабильные состояния $\text{He}(2^3S)$ и $\text{He}(2^1S)$, с которых при низком давлении гелия происходит заселение $\text{CO}^+(B)$ [3].

Возбуждением верхнего уровня в процессе перезарядки He^+ на CO пренебрегали, так как в этом случае с вероятностью, близкой к 100% [4], идет процесс:



Не учитывали также процессы рекомбинации He^+ и He_2^+ с электронами (поскольку быстро протекают процессы конверсии ионов и перезарядки на CO). Скорость диссоциативной рекомбинации $\text{CO}^+(B)$ также мала по сравнению со скоростью спонтанного распада, так как, согласно оценкам, концентрация электронов в смеси He (до 6 атм) + CO не превышает $n_e \sim 10^{12} \text{ см}^{-3}$ даже в треке α -частицы.

По этим причинам будем считать, что скорость заселения $B_{v=0}$ состояния пропорциональна скорости ионизации смеси. Тогда для измеряемой интенсивности люминесценции на переходе $B_{v=0} \rightarrow X_v$ в смеси получим:

$$I = CW/q_B \quad (3)$$

где: C-коэффициент пропорциональный чувствительности системы регистрации излучения, W-мощность накачки смеси (растет пропорционально давлению гелия), q_B -полнная скорость дезактивации состояния $B_{v=0}$. То есть:

$$q_B \sim W/I - p/I \quad (4)$$

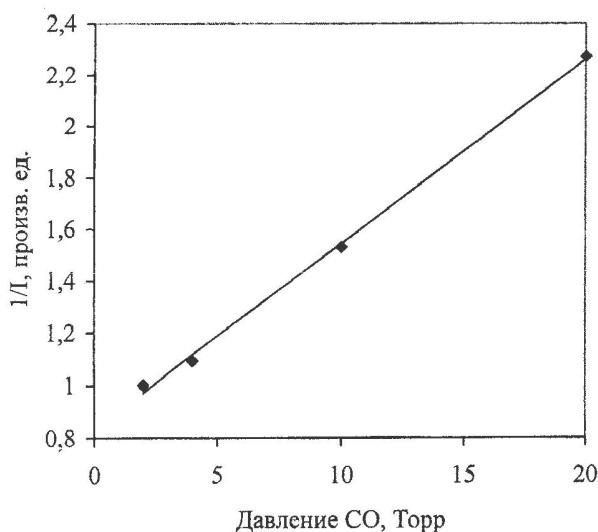


Рис. 2. Зависимость обратной интенсивности полосы 230 нм от давления CO в смесях He (4 атм)+CO.

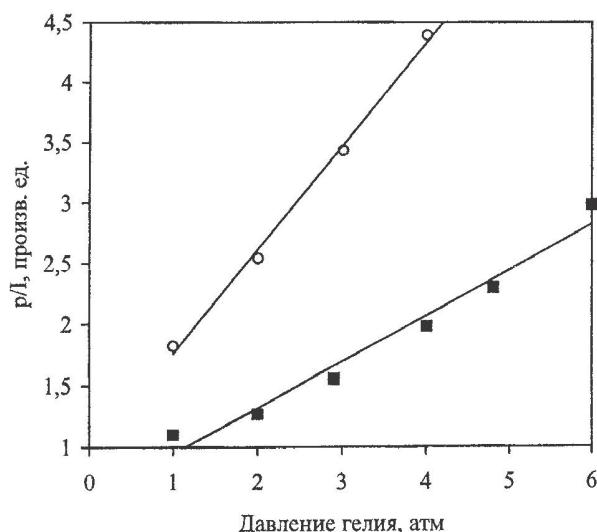


Рис. 3. Зависимость параметра p/I_0 от давления гелия в He+CO при давлении CO 3 (кружки) и 4 Торр (квадраты).

Таблица 2. Константы скорости тушения $\text{CO}^+(B)$.

№ пп	Процесс	Обозначение, единица измерения ($\text{см}^3 \text{с}^{-1}$, $\text{см}^6 \text{с}^{-1}$, с^{-1})	Константа скорости	Литература
1T	$\text{CO}^+(B_{v=0}) + \text{CO} \rightarrow \text{продукты}$	$k_1, 10^{-11}$	~ 2	*
2T	$\text{CO}^+(B_{v=0}) + \text{He} \rightarrow \text{продукты}$	$k_2, 10^{-13}$	5 ± 2	*
3T	$\text{CO}^+(B_{v=0}) + \text{CO} + \text{He} \rightarrow \text{продукты}$	$k_3, 10^{-30}$	2 ± 1	*
4T	$\text{CO}^+(B_{v=0}) + \text{Ne} \rightarrow \text{продукты}$	$k_4, 10^{-11}$	$1,5 \pm 0,5$	*
4-1	$\text{CO}^+(B_{v=1}) + \text{Ne} \rightarrow \text{продукты}$	$k_{41}, 10^{-11}$	~ 8	*
4-2	$\text{CO}^+(B_{v=2}) + \text{Ne} \rightarrow \text{продукты}$	$k_{42}, 10^{-11}$	~ 7	*
5	$\text{CO}^+(B_{v=0}) \rightarrow \text{CO}^+(X) + h\nu$	$v, 10^7$	1,92	5, 6

* - данные настоящей работы.

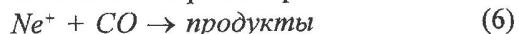
Из рис. 2 видно, что зависимость $q_B([\text{CO}])$ с достаточной точностью линейна, и в исследованном диапазоне давлений гелия и окиси углерода влияние трехчастичных процессов с участием иона CO^+ и двух молекул CO на населенность $B_{v=0}$ -состояния незначительно. Зависимость $q_B([\text{He}])$ при разных давлениях CO (рис. 3) показывает необходимость учета трехчастичных процессов (3T) (табл. 2). Тогда для полной частоты дезактивации состояния $B_{v=0}$ получим:

$$q_B = n + k_1[\text{CO}] + k_2[\text{He}] + k_3[\text{CO}][\text{He}] \quad (5)$$

Из данных рис. 2 и 3 и известного значения n находим приведенные в таблице значения k_1 , k_2 и k_3 .

Сравнение зависимости интенсивности различных линий 1^- системы CO (рис. 4) от давления гелия показывает, что уровень $v=2$ тушится гелием так же, как и основной колебательный уровень, а уровень $v=1$ примерно на 20–30% быстрее.

Ne+CO. Для уточнения значения константы скорости процесса (1T) представляло интерес исследование люминесценции в смеси Ne – CO, так как константа скорости процесса:



мала ($< 10^{-13} \text{ см}^3 \text{с}^{-1}$ [4]) по сравнению с константой скорости процесса перезарядки He^+ на CO, и измерения можно было бы провести в более широком интервале парциального давления CO.

Однако анализ зависимости интенсивности люминесценции от давления CO (см. рис. 1) показал, что наблюдается сильное тушение $\text{CO}^+(B)$ неоном, которое не позволяет оценить k_1 . Для определения константы скорости тушения неоном измерена зависимость интенсивности на $B-X$ переходе CO^+ от давления неона в смеси He (4 атм) + CO (4 Торр) + Ne (рис. 5). Полная скорость дезактивации $\text{CO}^+(B_v)$ в смеси без неона

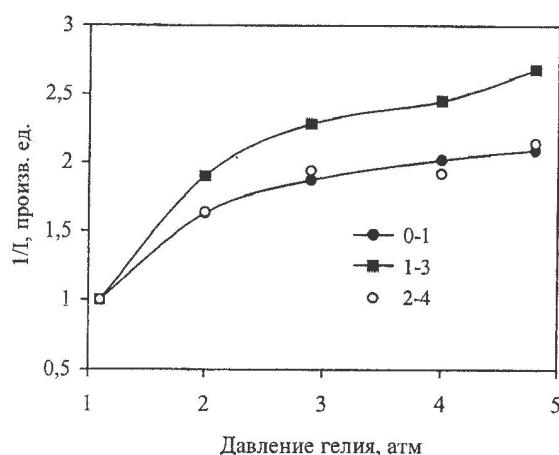


Рис. 4. Зависимость обратной интенсивности на разных переходах от давления гелия в $\text{He}+\text{CO}$ (4 Торр).

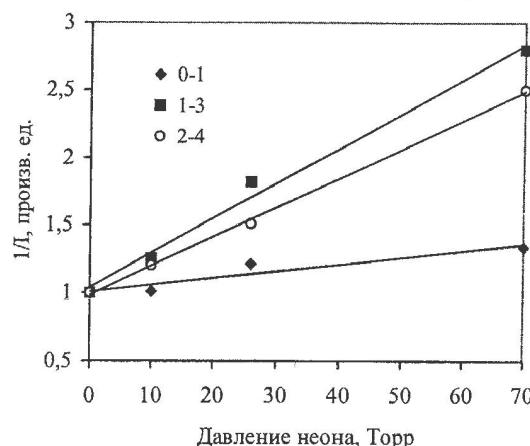
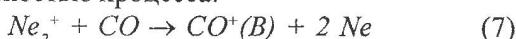


Рис. 5. Зависимость обратной интенсивности на разных переходах от давления неона в He (4 атм) + CO (4 Торр) + Ne .

расчитывалась с использованием констант k_1 , k_2 и k_3 , тогда по данным рис. 5 можно оценить константу скорости тушения $\text{CO}^+(B_v)$ неоном. Конкуренция процессов перезарядки He_2^+ на Ne и CO не учитывалась, так как образовавшиеся при конверсии Ne^+ ионы HeNe^+ и Ne_2^+ будут также перезаряжаться на молекулах CO . Полученные значения констант скорости тушения приводятся в таблице 2, скорость тушения $\text{CO}^+(B_{v=0})$ неоном на два порядка больше, чем для гелия. Таким образом, меньшая интенсивность люминесценции на $\text{B}-\text{X}$ переходе CO^+ в смеси $\text{Ne}+\text{CO}$ по сравнению с $\text{He}+\text{CO}$ объясняется сильным тушением B – состояния неоном, а не малой эффективностью процесса:



Отсутствие в спектре излучения смеси $\text{Ne}+\text{CO}$ линий с $v' > 0$ связано с тем, что константа скорости тушения неоном состояния $\text{B}^2\Sigma_{u,v}^+$ с $v'=1,2$ примерно в 5 раз больше, чем для основного колебательного состояния.

ЛИТЕРАТУРА

- Басов Н.Г., Александров А.Ю., Данилычев В.А. и др. Эффективный квазинепрерывный лазер высокого давления на первой отрицательной системе азота // Письма в ЖЭТФ. 1985. Т.42. Б.1. С. 39-42.
- Waller R.A., Collins C.B., Cunningham A.J. Stimulated emission from CO^+ pumped by charge transfer from He_2^+ in the afterglow of an e-beam discharge // Appl. Phys. Lett. 1975. V.27. N 6. P. 323-325.
- Collins C.B., Robertson W.W. Spectra excited in helium afterglow // J. of Chem. Phys. 1964. V.60. N 3. P. 701-712.
- Вирин Л.И. и др. Ионно-молекулярные реакции в газах. М.: Наука. 1979. 548 с.
- Радиге А.А., Смирнов Б.М. Справочник по атомной и молекулярной физике. М.: Атомиздат. 1980. 240 с.
- Кузнецова Л.И., Кузьменко Н.Е., Кузяков Ю.Я., Платинин Ю.А. Вероятности оптических переходов двухатомных молекул. М.: Наука. 1980.

7. Батырбеков Г.А., Сорока А.М., Хасенов М.У. и др. Кинетика возбужденных состояний Hg при накачке ионизирующим излучением // Препринт ИЯФ АН КазССР. № 3-87. Алма-Ата. 1987.

8. Кузьменко Н.Е. и др. Факторы Франка-Кондона двухатомных молекул. М.: Изд-во МГУ. 1984. 340 с.

9. Пирс Р., Гейдон А. Отождествление молекулярных спектров. М.: Изд-во иностранной литературы. 1949. 240 с.

10. Долгих В.А., Рудой И.Г., Самарин А.Ю., Сорока А.М. Кинетика разрушения инверсии в лазере на первой отрицательной системе азота // 1988. Т. 15. № 7. С. 1358-1362.

11. Rees D.B., Leffert C.B., Rose D.J. Electron Density in Mixed Gas Plasmas Generated by Fusion Fragments // J. of Appl. Phys. 1969. V. 40. N 4, p. 1848-1896.

12. Смирнов Б.М. Возбужденные атомы. Глава 5. М.: Энергоатомиздат. 1982.

Резюме

УК спектр аймағында $\text{B}-\text{X}$ өтүдегі CO^+ квазиүздікісін генерациялану мүмкіндігін зерттеуге арналған макала. ^{210}Po α -бољшектерімін қозған CO қоспасының люминесценция спектрі зерттелді. Өшіру жылдамдық тұрактылары CO бірінші теріс жүйе қарқындылығының қоспадағы газдың үлестік қысымына тәуелділігінен анықталды. Эксперименттік мәліметтерді талдауда, CO молекуласының He_2^+ иондарымен соғысуынан пайда болған, жоғарғы деңгейдегі толымдық ескерілді. $\text{CO}^+(B_{v=0})$ -ны неонмен өшіру жылдамдық тұрактысы ($1.5 \cdot 10^{-11} \text{ см}^{-3} \text{ c}^{-1}$) гелийдегіден екі есе үлкен, $\text{Ne}-\text{CO}$ қоспасында $\text{CO} 1^-$ жүйесіндегі жолак қарқындылығы, $\text{He}-\text{CO}$ қоспасындағыдан 2,5 есе аз.

Summary

Paper is devoted to research of an opportunity of continuous wave generation in UV region of a spectrum on $\text{B}-\text{X}$ transition of CO^+ . Spectra of a luminescence of mixes with CO are investigated at excitation by α -particles of ^{210}Po . Quenching rate coefficients are determined from dependencies of intensity of CO first negative system on partial pressure of gases in a mix. At the analysis of experimental data the population of the upper level was taken into account due to collisions of CO molecules with He_2^+ ions. Quenching rate coefficients of $\text{CO}^+(B_{v=0})$ by neon ($1.5 \cdot 10^{-11} \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$) on two order is more, than for helium, intensity of $\text{CO} 1^-$ -system bands in $\text{NE}-\text{CO}$ mix in 2.5 times is less, than in $\text{He}-\text{CO}$ mix.

TOO «Фотоника»

Поступила 2.07.09 г.