

УДК: 535.37; 621.386

М.У. ХАСЕНОВ

## О ВОЗМОЖНОСТИ КВАЗИНПЕРЫВНОЙ ГЕНЕРАЦИИ НА ПЕРВОЙ ОТРИЦАТЕЛЬНОЙ СИСТЕМЕ СО II. ТУШАЩИЕ ДОБАВКИ

(Представлена академиком НАН РК Э.Г. Босс)

Исследована возможность создания квазинпрерывного лазера на В–Х переходе CO<sup>+</sup>. В первой части настоящей работы исследованы спектры радиолюминесценции газовых смесей с CO, измерены константы скорости тушения состояния B<sup>2Σ<sub>u</sub><sup>+</sup> гелием, неоном и окисью углерода. В данной части работы определена эффективность заселения B<sub>v=0</sub> – состояния CO<sup>+</sup>, она оказалась низкой ( $\eta \sim 0,2$ ) по сравнению с эффективностью заселения N<sub>2</sub><sup>+(B)</sup> в гелий-азотной смеси. При этом константа скорости тушения В–состояния CO<sup>+</sup> гелием вдвое меньше, чем для N<sub>2</sub><sup>+(B)</sup>. Заселение при ионизирующей накачке идет, в основном, в А– и Х– состояния CO<sup>+</sup>. Поэтому для создания лазера, по-видимому, предпочтительнее рассмотреть 0-1 и 0-2 ( $\lambda = 230$  нм и  $\lambda = 242$  нм), а не 0-0 переходы первой отрицательной системы CO.</sup>

Лазер на 1<sup>-</sup>–системе окиси углерода представляет интерес в связи с тем, что генерация происходит в УФ-области спектра ( $\lambda \sim 200$  нм). Импульсная генерация на первой отрицательной системе CO была получена еще в 1975 г. [1], возможность достижения квазинпрерывной работы до сих пор не рассматривалась. В первой части настоящей работы исследованы спектры радиолюминесценции смесей CO с гелием или неоном, измерены константы скорости тушения состояния B<sup>2Σ<sub>u</sub><sup>+</sup> гелием, неоном и окисью углерода [2]. В данной части работы оценена эффективность заселения CO(B<sup>2Σ<sub>u</sub><sup>+</sup>) при ионизирующем накачке, определены константы скорости тушения состояния B<sup>2Σ<sub>u</sub><sup>+</sup> водородом, дейтерием и криптоном, эти газы предполагается использовать для расселения нижнего лазерного уровня X<sup>2Σ<sub>g</sub><sup>+</sup>.</sup></sup></sup></sup>

**Эффективность заселения CO<sup>+(B)</sup>.** Эффективность заселения уровня B<sup>2Σ<sub>u,v'=0</sub><sup>+</sup> определялась из соотношения интенсивностей первой отрицательной системы N<sub>2</sub> и системы Бальде-Джонсона (В–А переходы CO<sup>+</sup>). Исследуемые полосы лежат в удобном диапазоне длин волн (391,4 и 427,8 нм для N<sub>2</sub><sup>+</sup>, 395 и 420 нм для CO<sup>+</sup>), где чувствительность установки максимальна. Измерялось отношение интенсивностей полос для смесей He (4,0 атм) + N<sub>2</sub> (0,5 Torr) и He (4,0 атм) + CO. Р – ветви полос системы Бальде-Джонсона не разрешались и перекрывались с соответствующими Q–кантами. Суммарная интенсивность переходов 1<sup>-</sup> системы CO с уровня</sup>

v'=0 определялась с учетом коэффициента ветвления переходов с B<sup>2Σ<sub>u</sub><sup>+</sup>:</sup>

$$\delta = \frac{A_{v'}(B-A)}{A_{v'}(B-X)} = 8\% \quad [3] \quad (1)$$

Отношение числа квантов, излучаемых на переходах B–A иона CO<sup>+</sup> к числу квантов, излучаемых на первой отрицательной системе N<sub>2</sub> при одинаковом давлении гелия определяется выражением:

$$\frac{I_{N_2}}{I_{CO}} = \frac{x}{\eta}.$$

$$\cdot \frac{v + k_{1B}[CO] + k_{2B}[He] + k_{3B}[CO][He]}{v_{N_2} + k_{1N_2}[N_2] + k_{2N_2}[He] + k_{3N_2}[N_2][He]} \cdot \frac{v_{N_2}}{v} \quad (2)$$

где  $\chi = 0,75$  [4] – эффективность заселения N<sub>2</sub><sup>+(B<sub>v=0</sub>)</sup> в двух и трехчастичных процессах перезарядки на азоте;  $v_{N_2} = 1,58 \cdot 10^7 \text{ с}^{-1}$  [5] – скорость спонтанного распада N<sub>2</sub><sup>+(B)</sup>;  $k_{1N_2}$  и  $k_{2N_2}$  – константы скорости тушения N<sub>2</sub><sup>+(B)</sup> в двухчастичных столкновениях с N<sub>2</sub> и He [6],  $k_{3N_2}$  – константа скорости для трехчастичного процесса с N<sub>2</sub> и He [7],  $k_{1B}$ ,  $k_{2B}$ ,  $k_{3B}$  – константы скоростей тушения CO<sup>+(B)</sup> [2].

Измеренные значения отношения  $\frac{I_{B-A}}{I_{N_2}}$  (вероятности B – X переходов N<sub>2</sub><sup>+</sup> для определения их общей интенсивности взяты из [8]) показаны на рис. 1. Сравнивая измеренное и рассчитанное по

формуле (2) значения  $\frac{I_{B-A}}{I_{N_2}}$  получим  $\eta \sim 0,2$ . Как видно из рис. 1, измеренное и расчетное значение  $\frac{I_{B-A}}{I_{N_2}}$  удовлетворительно согласуются в широком диапазоне давления CO (если учесть большую погрешность в определении констант скорости тушения и других констант). Сравнительно низкая эффективность заселения связана, по-видимому, с большой величиной доли энергии идущей на образование  $\text{CO}^+$  в состояниях  $A^2\Pi_u$  и  $X^2\Sigma_g^+$ , а также с образованием  $\text{CO}^+(B)$  с  $v' > 0$ .

Эффективность заселения отдельных колебательных уровней B-состояния  $\text{CO}^+$  определялась по интенсивности 0-2, 1-3 и 2-4 переходов 1-системы, они лежат в узком диапазоне спектра (242÷247 нм), где спектральную чувствительность установки можно считать постоянной. Тогда, учитывая стационарность условий и близость коэффициентов тушения уровней, эффективность заселения уровня  $v'$  (то есть доля образования в процессах перезарядки  $\text{He}_2^+$  на CO ионов  $\text{CO}^+(B)$  на колебательном уровне  $v'$ ) определяется соотношением:

$$\eta_v = \frac{c_v I_{vv'}}{\tau_v \cdot A_{vv'}} \cdot \left( \sum_{v=0}^2 \frac{c_v I_{vv'}}{\tau_v \cdot A_{vv'}} \right)^{-1} \quad (3)$$

где:  $I_{vv'}$  - интенсивность люминесценции на переходе  $v' \rightarrow v''$ ,  $A_{vv'}$  - вероятность перехода  $v' \rightarrow v''$ ,  $\tau_v$  - время жизни уровня  $v'$ ,  $c_v$  - коэффициент, учитывающий большее тушение уровня  $v'=1$ :  $c_0=c_2=1$ ,  $c_1=1,2$ .

Для смеси He (4 атм)+CO (4 Торр) получены следующие эффективности заселения колебательных уровней:

$\eta_v = 63\%$  для уровня  $v'=0$ ;  $\eta_v = 27\%$  для  $v'=1$ ;  $\eta_v = 10\%$  для  $v'=2$ .

Суммарная интенсивность полос кометно-хвостовой системы CO, с поправками на спектральную чувствительность установки [9], составляет около 15% от суммарной интенсивности 1-системы, определенной, как описано выше, по интенсивности полос Бальде-Джонсона и известному коэффициенту ветвления переходов с B-состояния. Так как константы скорости тушения уровня  $A^2\Pi_u$  не измерялись, а время жизни уровня  $A^2\Pi_u$  примерно в 50 раз больше времени жиз-

ни уровня  $B^2\Sigma_{u,v}^+$  [5], измеренное отношение интенсивностей излучения не дает возможности оценить эффективность заселения A-состояния. Все же, по-видимому, заселение в процессе перезарядки  $\text{He}_2^+$  на CO идет, в основном, в A и X-состояния  $\text{CO}^+$ .

**Константы скорости перезарядки  $\text{He}_2^+$  на  $\text{H}_2$ ,  $\text{D}_2$ , Kr, CO.** Для оценки скорости тушения  $\text{CO}^+(B)$  добавками  $\text{H}_2$ ,  $\text{D}_2$ , Kr необходимо знать константы для "паразитных" процессов. Известно, что процесс перезарядки  $\text{He}^+$  на  $\text{H}_2$  и  $\text{D}_2$  практически отсутствует, а константа скорости соответствующего процесса с криптоном, по аналогии с Ar и Xe, должна быть также малой [10]. Поэтому основными "паразитными" процессами будет перезарядка  $\text{He}_2^+$  на  $\text{H}_2$ ,  $\text{D}_2$ , Kr. Так как люминесценция в смеси  $\text{He}+\text{N}_2$  более изучена, чем в  $\text{He}+\text{CO}$ , константы скорости перезарядки  $\text{He}_2^+$  определялись по зависимости, обратной интенсивности люминесценции  $\text{N}_2^+(B-X)$  в смеси  $\text{He}-\text{N}_2$  от давления добавок. Зависимость 1/I от давления криптона в смеси приведена на рис. 2. Поскольку константы перезарядки для азота хорошо известны, из рис. 2 и соотношения:

$$\frac{I_0}{I} = 1 + \frac{(k_3 + k_4[\text{He}]) \cdot [\text{Kr}]}{(k_1 + k_2[\text{He}]) \cdot [\text{N}_2]} \quad (4)$$

где  $I_0$  – интенсивность в смеси без криптона, легко находим константы  $k_3$  и  $k_4$ , константы  $k_1$ ,  $k_2$  приняты в качестве эталонных для определения абсолютных значений других коэффициентов. Аналогичные измерения проведены с  $\text{H}_2$ ,  $\text{D}_2$ , CO, результаты сведены в таблицу 1. Константы  $k_3$ ,  $k_6$ ,  $k_9$  хорошо согласуются с полученными в [11, 12], в то же время значения константы скорости для трехчастичного процесса перезарядки  $\text{He}_2^+$  на Kr, CO в [11, 12], на наш взгляд, для диапазона давлений гелия 1÷6 атм сильно завышены.

**Тушение  $\text{CO}^+(B)$  водородом, дейтерием и криптоном.** На рис. 3 показана зависимость интенсивности первой отрицательной системы CO от давления  $\text{H}_2$  и Kr в смеси He (4 атм)+CO (4 Торр)+Kr (или  $\text{H}_2$ ). Для Kr приводится также приведенная интенсивность:

$$I^* = I \frac{k_3[\text{Kr}] + k_4[\text{He}]}{k_9[\text{CO}]} + \frac{k_9[\text{CO}] + k_{10}[\text{CO}][\text{He}]}{k_{10}[\text{CO}][\text{He}]} \quad (5)$$

Таблица 1. Константы скорости перезарядки  $\text{He}_2^+$ .

№ пп	Процесс	Обозначение, единица измерения ( $\text{см}^3\text{с}^{-1}$ , $\text{см}^6\text{с}^{-1}$ )	Константа скорости	Литература
1	$\text{He}_2^+ + \text{N}_2 \rightarrow$ продукты	$k_1, 10^{-10}$	$11 \pm 3$	11
2	$\text{He}_2^+ + \text{N}_2 + \text{He} \rightarrow$ продукты	$k_2, 10^{-30}$	$16 \pm 3$	6, 11
3	$\text{He}_2^+ + \text{Kr} \rightarrow$ продукты	$k_3, 10^{-11}$	$8 \pm 3$ $\leq 8$	* 12
4	$\text{He}_2^+ + \text{Kr} + \text{He} \rightarrow$ продукты	$k_4, 10^{-30}$	$3 \pm 1$ $17 \pm 3$	* 12
5	$\text{He}_2^+ + \text{H}_2 \rightarrow$ продукты	$k_5, 10^{-10}$	$10 \pm 3$ $4,1 \pm 1,2$ $5,3 (200 \text{ K})$ $24 \pm 4$	* 12 4 6
6	$\text{He}_2^+ + \text{H}_2 + \text{He} \rightarrow$ продукты	$k_6, 10^{-30}$	$15 \pm 5$ $9 \pm 5$ $1$	* 12 7
7	$\text{He}_2^+ + \text{D}_2 \rightarrow$ продукты	$k_7, 10^{-10}$	$8 \pm 3$	*
8	$\text{He}_2^+ + \text{D}_2 + \text{He} \rightarrow$ продукты	$k_8, 10^{-30}$	$< 2$	*
9	$\text{He}_2^+ + \text{CO} \rightarrow$ продукты	$k_9, 10^{-10}$	$13 \pm 4$ $11$ $14$	* 11 4
10	$\text{He}_2^+ + \text{CO} + \text{He} \rightarrow$ продукты	$k_{10}, 10^{-30}$	$2 \pm 1$ $36 \pm 8$	* 11

/\* - данные настоящей работы.

Таблица 2. Константы скорости расселения  $\text{CO}^+(X)$ .

№ пп	Процесс	Обозначение, единица измерения ( $\text{см}^3\text{с}^{-1}$ , $\text{см}^6\text{с}^{-1}$ )	Константа скорости
11	$\text{CO}^+(X) + \text{Kr} \rightarrow \text{Kr}^+ + \text{CO}$	$k_{11}, 10^{-10}$	$22 \pm 4$
12	$\text{CO}^+(X) + \text{H}_2 \rightarrow \text{COH}^+ + \text{H}$	$k_{12}, 10^{-10}$	20
13	$\text{CO}^+(X) + \text{D}_2 \rightarrow \text{COD}^+ + \text{D}$	$k_{13}, 10^{-10}$	15 7,16
14	$\text{CO}^+(X) + 2\text{CO} \rightarrow \text{C}_2\text{O}_2^+ + \text{CO}$	$k_{14}, 10^{-30}$	198
15	$\text{CO}^+(X) + \text{CO} + \text{He} \rightarrow \text{C}_2\text{O}_2^+ + \text{He}$	$k_{15}, 10^{-30}$	142
16	$\text{CO}^+(X) + \text{CO} \rightarrow \text{C}_2\text{O}^+ + \text{CO}$ → продукты	$k_{16}, 10^{-10}$	$8,5 \pm 1,5$ 0,215

учитывающая конкуренцию процессов перезарядки на  $\text{N}_2$  и Kr. Видно, что спад интенсивности при увеличении давления добавки до 20 Тор объясняется (в пределах погрешности ~15 %) влиянием паразитных процессов. Тогда, зная константы скорости тушения  $\text{CO}^+(B)$  в столкновениях с участием CO и He, можно оценить верхнюю границу константы скорости тушения  $\text{CO}^+(B)$  молекулами  $\text{H}_2$ ,  $\text{D}_2$  или атомами криптона:  $k_q < 10^{-10} \text{ см}^3\text{с}^{-1}$ .

Таким образом, скорость расселения верхнего лазерного уровня водородом и криптоном, по крайней мере, в 20 раз меньше, чем нижнего.

Известные константы скорости процессов [10], расселяющих уровень  $\text{CO}^+(X)$ , сведены в таблицу 2.

Следует отметить процесс (15), который при использовании константы скорости, приведенной в [10], обеспечивает скорость расселения нижнего состояния  $\text{CO}^+$  в смеси He (4 атм)–CO (4 Тор) порядка  $2 \cdot 10^9 \text{ с}^{-1}$  при полной скорости дезактивации верхнего уровня  $\approx 10^8 \text{ с}^{-1}$ . В таком случае для квазинепрерывной генерации не обязательно наличие тушащей добавки. Хотя возможно, что при давлении гелия в несколько атмосфер, численное значение константы  $k_{15}$  будет много меньше указанного в табл. 2.

**Заключение.** В настоящей работе исследованы спектры излучения газовых смесей с окисью углерода при возбуждении  $\alpha$ -частицами по-

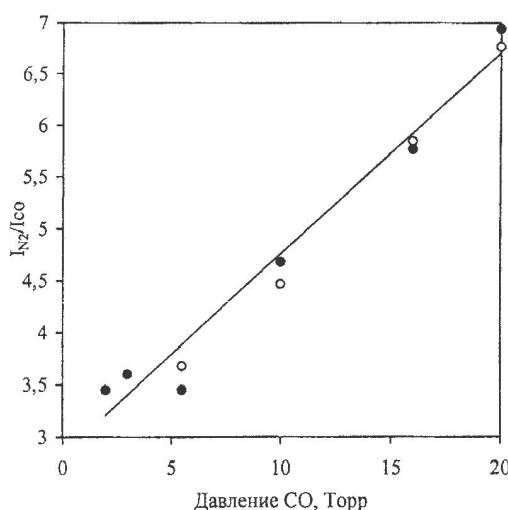


Рис. 1. Светлые кружки расчет по формуле (2) при  $\eta=0,19$ .

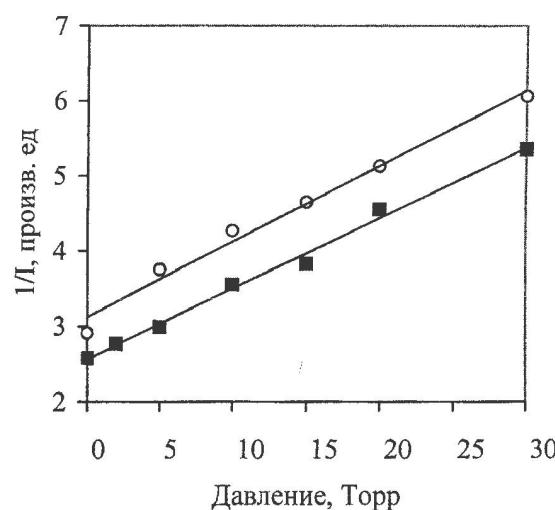


Рис. 2. Зависимость обратной интенсивности от давления криптона в смеси  $\text{He} + \text{N}_2$  (4 Торр) + Kr при давлении гелия 3 атм (кружки) и 6 атм (квадраты).

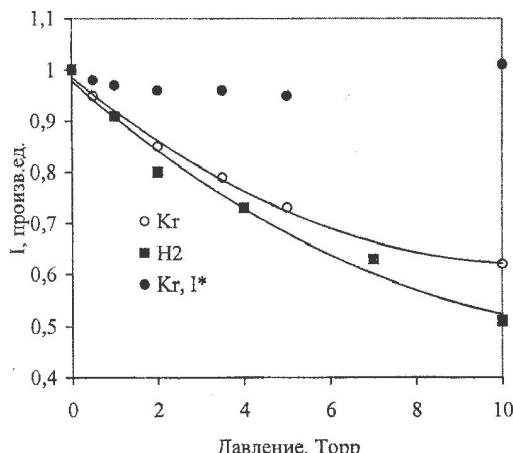
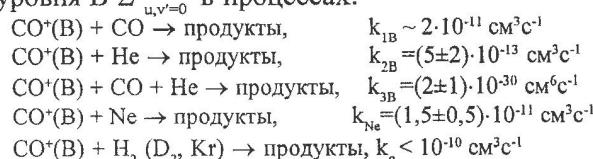


Рис. 3. Зависимость интенсивности на 230 нм от давления водорода или криптона.  $I^*$  - приведенная интенсивность, оцененная по формуле (5).

лония-210. Полученные результаты позволяют сделать следующие выводы:

1. При использовании газовой смеси  $\text{He} + \text{CO} + \text{H}_2$  ( $\text{D}_2$ , Kr) возможно достижение эффективной квазинепрерывной генерации на первой отрицательной системе окиси углерода в ультрафиолетовой области спектра.

2. Измерены константы скорости тушения уровня  $\text{B}^2\Sigma_{u,v=0}$  в процессах:



3. Определены константы скорости перезарядки  $\text{He}_2^+$  на  $\text{H}_2$ ,  $\text{D}_2$ , Kr, CO в двух и трехчастичных процессах.

Эффективность заселения  $\text{B}_{v=0}$  – состояния  $\text{CO}^+$  оказалась низкой ( $\eta \sim 0,2$ ) по сравнению с эффективностью заселения  $\text{N}_2^+(\text{B})$  в гелий-азотной смеси. Правда, при этом тушение B – состояния  $\text{CO}^+$  гелием вдвое меньше, чем для  $\text{N}_2^+(\text{B})$ . Заселение идет, в основном, в A– и X–состояния  $\text{CO}^+(\text{B})$ . Поэтому для создания лазера, по-видимому, предпочтительнее рассмотреть 0-1 и 0-2 ( $\lambda = 230$  нм и  $\lambda = 242$  нм), а не 0-0 переходы первой отрицательной системы CO. Более высокие колебательные уровни  $\text{CO}^+(\text{X})$  расселяются в процессе V-T релаксации. Отметим, что в [1] усиление наблюдалось именно на 0-2 переходе. В связи с относительно низкой селективностью заселения B-состояния  $\text{CO}^+$ , видимо, оптимальное давление тушащей добавки будет заметно выше ожидавшихся нами 3 Торр.

Спектры люминесценции измерены в Институте ядерной физики Национального ядерного центра РК. Автор благодарен А.М. Назарову, Н.И. Хисматулиной за помощь при измерениях.

#### ЛИТЕРАТУРА

- Waller R.A., Collins C.B., Cunningham A.J. Stimulated emission from  $\text{CO}^+$  pumped by charge transfer from  $\text{He}_2^+$  in the afterglow of an e-beam discharge // Appl. Phys. Lett. 1975. V.27. N 6. P. 323-325.
- Хасенов М.У. О возможности квазинепрерывной генерации на первой отрицательной системе CO. I. Кинетика дезактивации  $\text{CO}^+(\text{B})$  // Доклады НАН РК. 2008.
- Judge D.L., Lee L.C. Electronic Transition Moments for A-X, B-X and B-A Transitions in  $\text{CO}^+$  // J. of Chem. Phys. 1972. V.57. N1. Part 2. P. 455.

4. Collins C.B. // IEEE J. 1984. V. QE-20. P.47.
5. Радыг А.А., Смирнов Б.М. Справочник по атомной и молекулярной физике. М.: Атомиздат. 1980. 240 с.
6. 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.
7. Самарин А.Ю. Лазер на первой отрицательной системе азота со столкновительным расселением нижнего уровня // Автографат канди-датской диссертации. М.: ФИАН СССР. 1989.
8. Jonson A.V., Fowler R.G. Measured Lifetimes of Rotational and Vibrational Levels of Electronic States of  $N_2^*$  // J. of Chem. Phys. 1970. V.53. N1, P. 65-72.
9. 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.
10. Вирин Л.И. и др. Ионно-молекулярные реакции в газах. Наука, М.: 1979. 548 с.
11. Lee F.W., Collins C.B., Waller R.A. Measurement of the rate coefficients for the bimolecular charge transfer of  $He_2^+$  with Ne, Ar,  $N_2$ , CO,  $CO_2$  and  $CH_4$  // J. of Chem. Phys. 1976. V.65. N5. P. 1605-1615.
12. Collins C.B., Lee F.W. Measurement of the rate coefficients for the bimolecular and termolecular ion-molecule reactions of  $He_2^+$  with selected atomic and molecular species // J. of Chem. Phys. 1979. V.70. P. 1275.

### Резюме

$CO^+$ -тын B-X өтүдеги квазиүздікіз лазер жасаудың мүмкінділігі зерттелген. Жұмыстын бірінші болімінде  $CO$

мен газды коспаларының радиолюминесценциялық спектрлері зерттеліп, гелий, неон және көміртегі тотығының  $B^2\Sigma^+$  құйін өшіру жылдамдық тұрақтылары өшіндеді. Жұмыстын берілген болімінде  $B_{v=0}^2 -$ құйдегі  $CO^+$ -ты толтыру тиімділігі табылып, гелий-азот коспасындағы  $He_2^+(B)$  толтыру тиімділігімен салыстырыланда төмен ( $\eta \sim 0,2$ ) болатындығы аныкталды. Бірақ B-құйдегі  $CO^+$  гелиймен өшіру жылдамдық тұрақтысы,  $N_2^+(B)$ -ны өшірумен салыстырыланда екі есе аз. Иондауыш қоздыру кезіндегі толымдылық негізінен  $CO^+$  A-және X- құйлеріне жүреді. Сондықтан лазерді өндөу алдында  $CO$  бірінші теріс жүйедегі 0-0 өтүден гөрі, 0-1 және 0-2 ( $\lambda = 230$  нм және  $\lambda = 242$  нм) өтүлерін қарастырылан тиімдірек көрінеді.

### Summary

The opportunity of creation of the continuous wave laser on B-X transition of  $CO^+$  is investigated. In the first part of the present work spectra of a radioluminescence of gas mixes with  $CO$  are investigated, rate coefficients of  $B^2\Sigma^+$  state quenching by helium, neon and carbon monoxide are measured. In the given part of work efficiency of  $CO^+(B_{v=0})$  population is determined, it appeared low ( $\eta \sim 0,2$ ) in comparison with efficiency of  $N_2^+(B)$  population in a helium-nitric mixes. Thus the rate coefficient of  $CO^+(B)$  quenching by helium is twice less, than for  $N_2^+(B)$ . The populating at ionising pumping goes, basically, in A- and X- states of  $CO^+$ . Therefore for creation of the laser, apparently, it is more preferable to consider 0-1 and 0-2 transitions ( $\lambda = 230$  nm and  $\lambda = 242$  nm), instead of 0-0 transition of  $CO$  first negative system.

ТОО «Фотоника»

Поступила 2.07.09