

# Влияние вынужденного излучения на распределение молекул СО по колебательным уровням

Г.М.Григорьян, И.В.Кочетов

*Измерена колебательная функция распределения (КФР) молекул СО при наличии и в отсутствие генерации в СО-лазере, возбуждаемом продольным разрядом постоянного тока. В теоретической модели совместно решались кинетические уравнения для КФР и уравнение Больцмана для функции распределения электронов по энергиям. Сопоставление экспериментальных и расчетных спектров генерации и КФР продемонстрировало их хорошее согласие. Путем введения в резонатор поглощающей ячейки с различными газами (NO, C<sub>2</sub>H<sub>4</sub>, CO<sub>2</sub>, C<sub>6</sub>H<sub>6</sub>) исследовано влияние селекции линий генерации на спектр генерации и КФР молекул СО. Экспериментально подтверждено сильное уменьшение населенностей молекул СО на колебательных уровнях, вовлеченных в генерацию, и на более высоких, а также незначительное изменение КФР на более низких уровнях. Показана возможность изменения формы КФР молекул СО в области высоких колебательных уровней путем введения внутрирезонаторного поглощения.*

**Ключевые слова:** СО-лазер, колебательная функция распределения, поглощающая ячейка, селекция линий.

## 1. Введение

Экспериментальные данные, полученные при использовании СО-лазера, показывают, что генерация на колебательно-вращательных переходах приводит к уменьшению населенностей электронно-возбужденных уровней [1] и к увеличению приведенной напряженности электрического поля  $E/N$  ( $N$  – плотность нейтральных частиц), при которой разряд горит [2, 3]. Это указывает на заметную роль в балансе электронно-возбужденных и заряженных частиц колебательно высоковозбужденных молекул СО, концентрация которых падает при наличии генерации. Возможны химические реакции с участием колебательно-возбужденных молекул СО [4]. В связи с этим представляет определенный интерес управление КФР молекул СО путем изменения спектра и интенсивности лазерной генерации. Такое управление формой КФР может оказаться полезным при исследовании элементарных процессов с участием высоковозбужденных колебательных молекул СО.

Нам известно всего три работы, в которых измерялась КФР молекул СО при наличии генерации. Это наши работы [2, 3, 5], в которых измерялась КФР молекул СО в непрерывном СО-лазере с продольным разрядом постоянного тока при криогенном охлаждении стенок разрядной трубки. Кроме того, отметим работу [6], где измерялась КФР молекул СО в сверхзвуковом потоке газовой смеси в области, расположенной ниже резонатора по потоку газа. Размер резонатора был меньше высоты раз-

рядной камеры [6], поэтому регистрируемый сигнал первого обертона представлял собой сумму сигналов от частей газа, прошедших и не прошедших охваченную генерацией зону, что вносило искажение в форму восстанавливаемой из спектра обертонового сигнала КФР.

Использовать метод внутрирезонаторного поглощения для селекции спектра генерации СО-лазера было предложено еще в работах [7–12], где исследовалась возможность улучшения прохождения излучения СО-лазера в атмосфере путем подавления генерации на переходах, излучение которых сильно поглощается в атмосфере парами воды. Ячейка с парами воды помещалась внутрь резонатора, что приводило к прекращению генерации на линиях, поглощающихся в атмосфере парами воды, и к увеличению интенсивности генерации на линиях, попадающих в окна прозрачности. В [13] теоретически исследовано, как изменяется КПД непрерывного СО-лазера в зависимости от степени разрежения спектра и спектрального положения выделенных линий. Показано, что селекция отдельных линий слабо влияет на мощность генерации СО-лазера. На одной линии можно получить до 50 % от мощности, достигаемой в неселективном резонаторе. Теоретическое исследование эффективности генерации импульсного СО-лазера на обертонах или основных переходах в зависимости от ширины спектра генерации выполнено в работе [14].

Все предыдущие экспериментальные работы ограничивались управлением спектром генерации с помощью ячейки с парами воды. Представляет интерес исследование возможности управления спектром методом внутрирезонаторного поглощения с использованием других газов.

Целью настоящей работы являлось экспериментальное и расчетно-теоретическое исследование КФР молекул СО в активной среде и спектральных характеристик лазерного излучения электроразрядного СО-лазера с медленной прокачкой газовой смеси через разрядную трубку при охлаждении стенок разрядной трубки жид-

Г.М.Григорьян. Научно-исследовательский институт им. В.А.Фока Санкт-Петербургского государственного университета, Россия, 198504 С.-Петербург, Петродворец, ул. Ульяновская, 1

И.В.Кочетов. ФГУП «ГНЦ РФ – Троицкий институт инновационных и термоядерных исследований», Россия, Московская обл., 142190 Троицк; e-mail: kochet@trinit.ru

Поступила в редакцию 4 декабря 2007 г., после доработки – 2 апреля 2008 г.

ким азотом или без прокачки с охлаждением стенок трубки проточной водой в режиме свободной генерации, а также при использовании внутррезонаторного поглощения излучения молекулами NO, CO<sub>2</sub>, C<sub>2</sub>H<sub>4</sub> и C<sub>6</sub>H<sub>6</sub>.

## 2. Экспериментальная установка

Измерения проводились в разрядной трубке из молибденового стекла, которая могла охлаждаться проточной водой или жидким азотом. Использовались разрядные трубки диаметром  $D = 1.5$  или  $2.0$  см и длиной  $L = 50 - 60$  см. Для вывода излучения использовались окна из кристаллов фтористого кальция, расположенные под углом Брюстера. Полые цилиндрические электроды из тантала располагались в боковых отроствах на расстоянии  $4.5$  см от оси разрядной трубки. Для возбуждения активной среды использовался тлеющий разряд постоянного тока. Резонатор плоскосферической конфигурации был образован полностью отражающим зеркалом с золотым покрытием с радиусом кривизны  $5$  м и плоским зеркалом с отверстием в центре (диаметром  $d = 0.2$  или  $0.3$  см) для вывода излучения, длина резонатора составляла  $\sim 100$  см. В качестве рабочих газов использовались смеси He – CO – O<sub>2</sub> (при работе в проточном режиме с охлаждением жидким азотом) и He – CO – Xe (при работе в отпаянном режиме с охлаждением проточной водой). Содержание CO в рабочих смесях (He – CO) менялось в диапазоне  $5\% - 15\%$ . При работе в проточном режиме в смесь добавлялся кислород (концентрация кислорода составляла  $1\% - 5\%$  от концентрации CO), при работе в отпаянном режиме использовались смеси, в которых концентрация Xe была близка к концентрации молекул CO. Ток разряда  $I_d$  менялся в диапазоне  $20 - 80$  мА, давление газа  $P$  составляло  $5 - 20$  Тор.

Для нахождения КФР молекул окиси углерода в экспериментах регистрировалось излучение основного тона  $\nu \rightarrow \nu - 1$  (в отсутствие генерации), а также спонтанного излучения первого  $\nu \rightarrow \nu - 2$  и второго  $\nu \rightarrow \nu - 3$  обертонов колебательных переходов основного электронного состояния молекулы CO. Для регистрации сигнала использовалась схема синхронного детектирования. Фотоприемниками служили охлаждаемые жидким азотом фотосопротивления из HgCdTe (с чувствительностью  $\sim 10^5$  В/Вт) и неохлаждаемые фотосопротивления из InSb.

Для восстановления КФР молекул CO по интенсивностям обертонов использовался метод, аналогичный описанному в работах [15 – 17]. При измерении поступательной температуры газа снимался спектр полос Ангстрема молекулы CO с неразрешенной вращательной структурой. В этом случае в качестве приемника использовался ФЭУ. Для исключения возможности попадания рассеянного лазерного излучения в монохроматор на входе устанавливался кварцевый фильтр.

При исследовании влияния внутррезонаторного поглощения на спектр генерации в резонатор устанавливалась поглощающая кювета в виде стеклянной трубки с внутренним диаметром  $2.6$  см и длиной  $35$  см с рубашкой для термостатирования, которая была подключена к проточному термостату. Температура стенок трубки определялась температурой воды, циркулирующей через термостат. Контроль температуры стенок кюветы осуществлялся с помощью медьконстантановых термопар. На торцах кюветы были установлены окна из CaF<sub>2</sub>, расположенные под углом Брюстера. Для изменения пара-

метров газа в поглощающей ячейке в кювете зажигался индукционный ВЧ разряд. В этом случае кювета устанавливалась внутрь соленоида, по которому пропусклся ток высокой частоты ( $\sim 2$  МГц).

## 3. Теоретическая модель

При расчетах использовалась однородная модель приосевой зоны разрядной трубки. Величина приведенного электрического поля  $E/N$  и поступательная температура газа задавались в соответствии с их экспериментально измеренными значениями. Плотность мощности разряда на оси находилась из экспериментальной величины тока разряда, в предположении бесселевого профиля концентрации электронов по радиусу трубки. Описание теоретической модели для расчета КФР молекул CO приведено в нашей предыдущей работе [18].

Для вычисления интенсивности излучения на колебательно-вращательных переходах, где коэффициент усиления слабого сигнала превышал потери, вносимые резонатором, использовалось условие равенства коэффициента усиления потерям резонатора на длине волны соответствующего перехода [19]. При таком подходе генерация в расчетах могла происходить лишь на одном вращательном переходе, соответствующем максимуму коэффициента усиления для данного колебательного перехода.

## 4. Результаты

На рис.1 приведены результаты измерений КФР молекул по колебательным уровням в режиме усиления и в режиме генерации в смеси He – CO – Xe для отпаянного CO-лазера с охлаждением стенок разрядной трубки водой. Видно, что наличие генерации приводит к заметному уменьшению населенностей высоких ( $\nu > 10$ ) колебательных уровней, в то время как населенности нижних колебательных уровней не меняются. При возникновении генерации ток разряда поддерживался постоянным, величина приведенного электрического поля увеличивалась на  $3\% - 5\%$ , температура газа на оси разрядной трубки незначительно ( $\sim 10$  К) уменьшалась. КПД генерации составлял  $13\%$ . Линиями на рис.1 показаны ре-

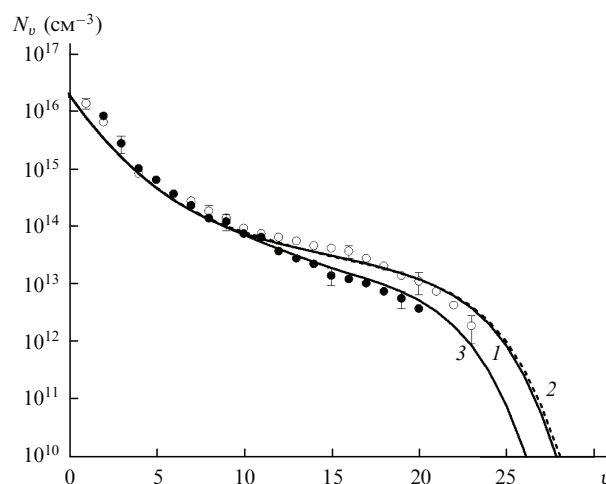


Рис.1. Измеренные КФР молекул CO в режиме усиления (○) и генерации (●), а также результаты моделирования КФР в режимах усиления (1) при  $T = 450$  К и генерации при  $T = 443$  К и при потерях резонатора  $1.7 \times 10^{-4}$  (2) и  $4 \times 10^{-5}$  см<sup>-1</sup> (3); He:CO:Xe = 80:11:9,  $P = 16$  Тор,  $I_d = 30$  мА,  $E/N = 27$  Тд,  $D = 1.5$  см,  $d = 0.2$  см,  $L = 50$  см.

зультаты расчетов КФР. Как видно из сравнения экспериментальной и теоретической КФР в режиме усиления, между ними существует хорошее согласие (кривая 1). Если генерация происходит на основной моде и потери резонатора определяются отношением площади отверстия выходного зеркала к площади активной среды, расчетные населенности колебательных уровней оказываются заметно выше экспериментальных (кривая 2). Такая оценка потерь резонатора дает  $\Gamma = 1.7 \times 10^{-4} \text{ см}^{-1}$ . Хорошее согласие расчетных и экспериментальных результатов наблюдается при уменьшении потерь в 4–5 раз, при этом они составляют  $4 \times 10^{-5} \text{ см}^{-1}$  (кривая 3). Оценка размера основной моды на зеркале дает значение около 0.2 см, что соответствует размеру выходного отверстия. Потери на основной моде велики, и генерация будет происходить преимущественно на высоких модах резонатора. Это подтверждается наблюдаемым в эксперименте радиальным распределением интенсивности лазерного пучка в дальней зоне. Оценка потерь резонатора с отверстием при генерации не на основной моде представляется затруднительной. Заметим, что оценка потерь резонатора, вносимых неточностью юстировки выходных окон, составляет  $2.4 \times 10^{-5} \text{ см}^{-1}$  (считалось, что точность юстировки окон около  $1^\circ$ , что дает отражение от каждой из их поверхностей 0.03 %). Это значение не противоречит общим потерям  $4 \times 10^{-5} \text{ см}^{-1}$ .

В эксперименте генерация происходила сразу на нескольких (3–5) вращательных переходах одного колебательного перехода. Поэтому интенсивность генерации на отдельном колебательном переходе определялась как сумма интенсивностей для всех вращательных переходов, соответствующих данному колебательному переходу. На рис.2 показаны экспериментальный и расчетный спектры генерации лазера в условиях, соответствующих рис. 1. Сравнение показывает, что, так же как и КФР, экспериментальный спектр генерации хорошо согласуется с расчетным, полученным при потерях в резонаторе  $\Gamma = 4 \times 10^{-5} \text{ см}^{-1}$ .

При сдвиге левой границы спектра генерации в область больших колебательных уровней должны возрасти интенсивности генерации на более высоких колебательных переходах. Мы исследовали возможность влияния этого процесса на спектральные характеристики лазера, используя внутрирезонаторное подавление генерации на

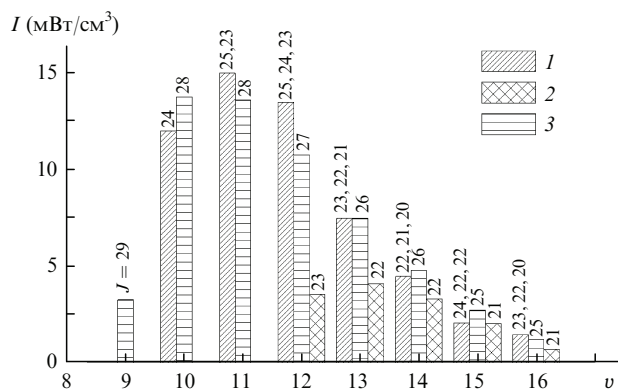


Рис.2. Экспериментально измеренный (1) и расчетные спектры генерации СО-лазера (переходы  $v \rightarrow v - 1$ ) при потерях в резонаторе  $1.7 \times 10^{-4}$  (2) и  $4 \times 10^{-5} \text{ см}^{-1}$  (3) (вращательные квантовые числа  $J$  переходов Р-ветви ( $J - 1 \rightarrow J$ ), на которых наблюдалась генерация, указаны над суммарной интенсивностью колебательного перехода). Остальные параметры те же, что и на рис.1.

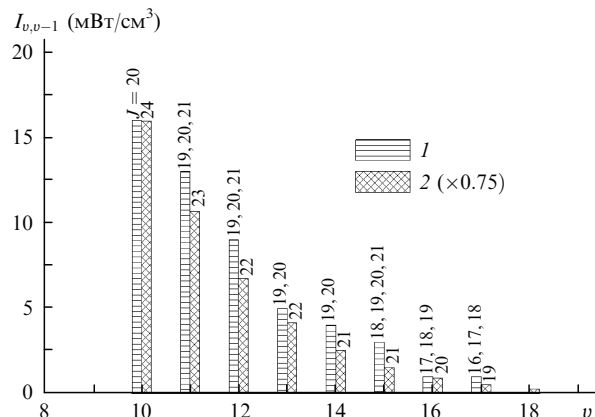


Рис.3. Экспериментально измеренный (1) и расчетный (2) спектры генерации; внутри резонатора помещена поглощающая ячейка с NO, He:CO:O<sub>2</sub> = 91:8.92:0.08,  $P = 12 \text{ Тор}$ ,  $I_d = 35 \text{ мА}$ ,  $E/N = 18.6 \text{ Тд}$ ,  $D = 2.2 \text{ см}$ ,  $d = 0.3 \text{ см}$ ,  $L = 60 \text{ см}$ ,  $T = 310 \text{ К}$ ,  $\Gamma = 4 \times 10^{-5} \text{ см}^{-1}$ .

коротковолновом конце спектра излучения. Вследствие ангармонизма резонанс между CO ( $v \rightarrow v - 1$ ) и NO ( $0 \rightarrow 1$ ) в исследуемых условиях наблюдается как раз в районе начала плато КФР молекул CO, так как для молекулы NO энергия первого колебательного кванта несколько меньше, чем для молекулы CO.

При исследовании влияния на спектр генерации внутрирезонаторного поглощения молекул NO в резонаторе СО-лазера устанавливалась кювета с NO или смесью He – NO (при давлении  $\sim 200 \text{ Тор}$ ).

На рис.3 показан спектр излучения СО-лазера с установленной в резонаторе поглощающей кюветой с NO. При моделировании считалось, что из-за наличия поглощающей кюветы для колебательных переходов с  $v < 10$  коэффициент усиления слабого сигнала не достигал порогового, поэтому условия на генерацию задавались, начиная с 10-го уровня. При установке в резонатор кюветы с NO мощность генерации уменьшалась не более чем на 10 % – 15 %. Проведенные расчеты показали уменьшение мощности генерации на 17 %.

На рис.4 показаны КФР молекул СО по колебательным уровням в режиме усиления, в случае свободной генерации и при селекции спектра генерации, осуществляе-

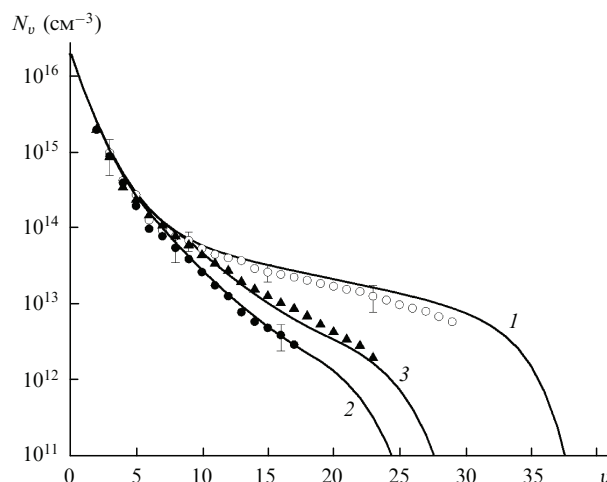


Рис.4. Измеренные КФР молекул СО в режимах усиления (○), свободной генерации (●) и генерации с поглощающей ячейкой (▲), а также результаты моделирования КФР в режимах усиления (1), свободной генерации (2) и генерации с поглощающей ячейкой (3). Остальные параметры те же, что и на рис.3.

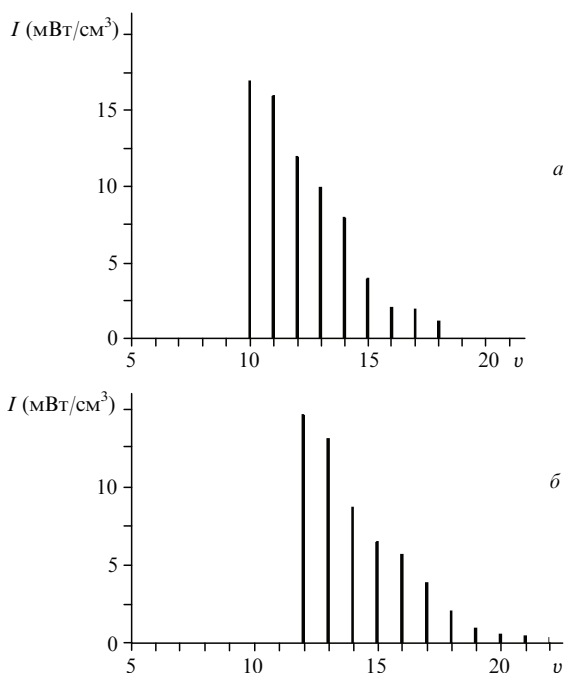


Рис.5. Экспериментально измеренное изменение спектра генерации СО-лазера с ненагретой (а) и нагретой до  $T = 360$  К (б) ячейками с NO в резонаторе. Остальные параметры те же, что и на рис.4.

мой с помощью поглощающей ячейки с NO. Использовалась смесь He – CO – O<sub>2</sub>, и стенки разрядной трубки охлаждались жидким азотом. Из сравнения экспериментальных и теоретических результатов видно, что их согласие, также как и для случая охлаждения стенок разрядной трубки водой, вполне удовлетворительное. Для соответствующих рис.3 условий эксперимента нижним колебательным уровнем, участвующим в генерации, является уровень с  $v = 7$ . Как известно [20], коротковолновая граница спектра генерации СО-лазера лежит вблизи колебательного уровня, соответствующего началу плато в КФР молекул СО. Начало плато определяется номером колебательного уровня ( $v_T$ ), который называется триноровским минимумом [21]. С появлением генерации населенности колебательных уровней выше триноровского минимума резко падают, при этом наклон КФР выше триноровского минимума зависит от добротности резонатора [22].

Внесение в резонатор ячейки с NO приводило к изменению функции распределения молекул СО по колебательным уровням. Как видно из рис.4, в этом случае населенности высоких колебательных уровней при генерации лазера с ячейкой с NO в резонаторе (кривая 3) заметно превышают населенности колебательных уровней в условиях свободной генерации (кривая 2). Наличие ячейки с NO приводит к сдвигу в длинноволновую область левой границы спектра генерации лазера, что и вызывает наблюдаемое увеличение населенностей. Нагрев NO или зажигание безэлектродного ВЧ разряда в кювете с NO (рис.5, б) приводили к более сильному сдвигу спектра генерации в длинноволновую область, что можно объяснить увеличением населенности колебательных уровней NO. Нельзя также исключать возможность образования в кювете с NO более сложных окислов азота в результате диссоциации NO и последующих химических реакций, что может увеличивать поглощение излучения в резонаторе. Это поглощение приво-

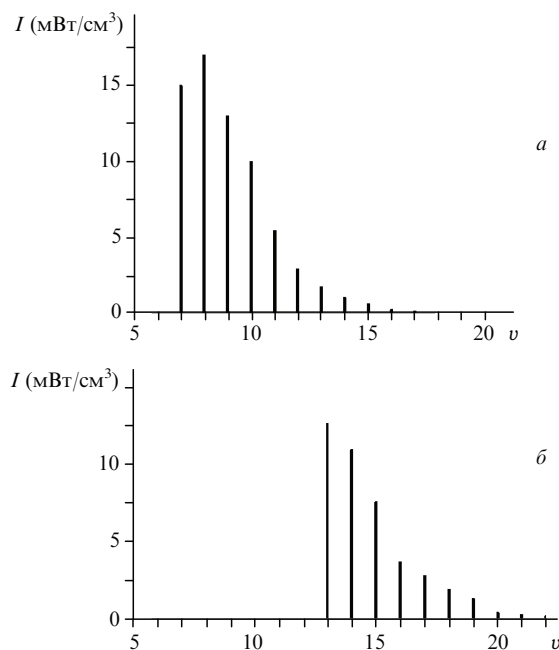


Рис.6. Экспериментально измеренное изменение спектра свободной генерации СО-лазера (а) и спектра генерации СО-лазера с внутрирезонаторной ячейкой с NO при зажженном в ней ВЧ разряде (б); He: NO = 7:3,  $P = 80$  Тор.

дило к исчезновению генерации одновременно на всех вращательных переходах колебательного уровня. По-видимому, это связано с малым превышением коэффициента усиления слабого сигнала над порогом генерации.

Мы исследовали возможность управления спектром генерации с помощью других газов, в частности СО<sub>2</sub>, С<sub>2</sub>Н<sub>4</sub>, С<sub>6</sub>Н<sub>6</sub>. Эксперименты показали, что таким образом можно значительно изменить спектр генерации лазера с незначительными потерями мощности. На рис.7 и 8 представлены результаты модификации спектра с помощью внутрирезонаторного поглощения в смеси СО<sub>2</sub>– С<sub>2</sub>Н<sub>4</sub> и в С<sub>6</sub>Н<sub>6</sub>. Видно, что в этих случаях происходят существен-

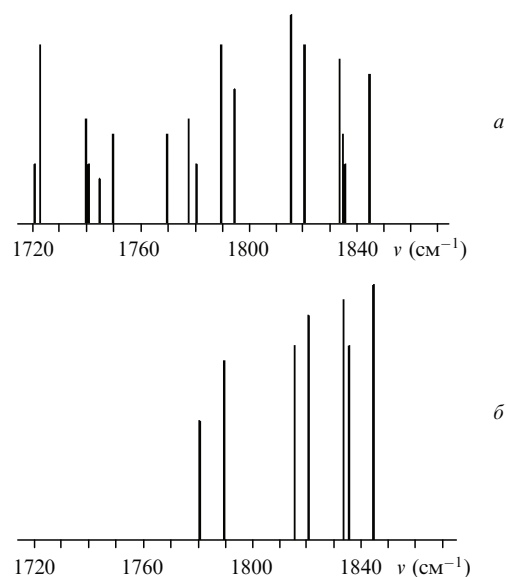


Рис.7. Экспериментальные спектры свободной генерации СО-лазера (а) и его генерации при наличии в резонаторе поглощающей ячейки со смесью СО<sub>2</sub>:С<sub>2</sub>Н<sub>4</sub> = 7:3 ( $P = 100$  Тор) (б); эффективность селекции составляет 74 %, He:СО:N<sub>2</sub>:О<sub>2</sub> = 96:1:2:0.04,  $P = 5$  Тор,  $I_d = 30$  мА.



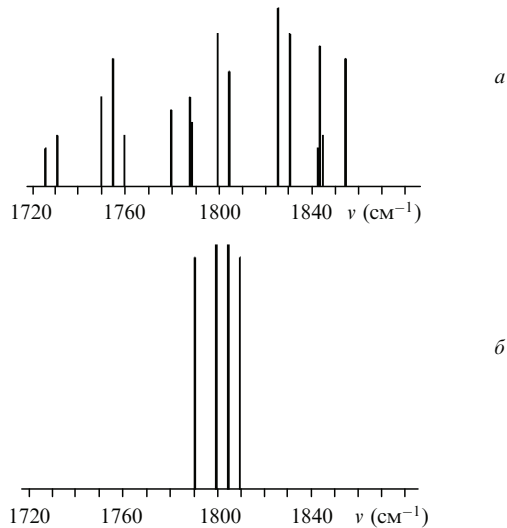


Рис.8. Экспериментальные спектры свободной генерации СО-лазера (а) и его генерации при наличии в резонаторе поглощающей ячейки с  $C_6H_6$  ( $P = 50$  Тор) (б); эффективность селекции составляет 67 %,  $He:CO:N_2:O_2 = 96:2:2:0.02$ ,  $P = 13$  Тор,  $I_d = 50$  мА.

ные изменения спектрального диапазона излучения СО-лазера и распределения интенсивности излучения по спектральным линиям. Мощность генерации при этом уменьшилась на  $\sim 30\%$ . Оптимизация условий эксперимента – состава рабочей смеси и параметров разряда, а также состава газов, использующихся для внутрирезонаторного поглощения – может позволить модифицировать спектр излучения с еще большей эффективностью.

## 5. Заключение

Выполнены измерения КФР молекул СО в СО-лазере в отсутствие и при наличии генерации при его возбуждении продольным разрядом постоянного тока. Сопоставление экспериментальных результатов измерения КФР и спектров генерации с расчетными продемонстрировало их хорошее согласие. Использование внутрирезонаторной поглощающей ячейки с различными газами (NO,  $CO_2$ ,  $C_2H_4$  и  $C_6H_6$ ) позволяет существенно изменять спектр генерации, при этом КПД уменьшается незначительно. Применение поглощающей ячейки с NO приводит к заметному смещению спектра генерации в длинноволновую область. Нагрев ячейки с NO или зажигание в ней индукционного ВЧ разряда увеличивает наблюдаемый эффект. Смещение спектра генерации в длинноволновую область приводит к увеличению населенностей

колебательных уровней в области колебательных уровней с большими  $v$ .

Управление спектром генерации таким способом позволяет с малыми энергетическими потерями формировать спектральное излучение СО-лазера, слабо поглощающееся в среде с примесями используемых в поглощающей ячейке газов.

Внутрирезонаторная поглощающая ячейка дает возможность менять форму КФР молекул СО в области высоких колебательных уровней, что может оказаться полезным при исследовании элементарных процессов с участием высоковозбужденных молекул СО.

Работа выполнена при частичной поддержке РФФИ (проект № 07-02-01114). Авторы признательны А.П.Напартовичу за критические замечания и плодотворное обсуждение результатов работы.

1. Марголин А.Д., Сарайкин С.В., Шмелев В.М. *ЖТФ*, **53**, 1502 (1983).
2. Григорьян Г.М., Ионих Ю.З. *Квантовая электроника*, **18**, 29 (1991).
3. Grigorian G.M., Ionikh Y.Z., Kochetov I.V., Pevgov V.G. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **25**, 1064 (1992).
4. De Benedictis S., Capitelli M., Cramarossa F., d'Agostino R., Gorse C., Brechignac P. *Opt. Commun.*, **47**, 107 (1983).
5. Григорьян Г.М., Ионих Ю.З. *ТВТ*, **28**, 1080 (1990).
6. Daiber J.W., Thomson H.M. *IEEE J. Quantum Electron.*, **13**, 10 (1977).
7. Bhaumic M.L. *Appl. Phys. Lett.*, **20**, 342 (1972).
8. Rice D.K. *J. Opt. Soc. Am.*, **62**, 1981A (1972).
9. Rice D.K. *Appl. Opt.*, **12**, 218 (1973).
10. Rice D.K. *Appl. Opt.*, **13**, 12 (1974); **13**, 2812 (1974).
11. Лоткова Э.Н., Писаренко В.Н., Соболев Н.Н. *Препринт ФИАН* № 37 (М., 1975).
12. Басов Н.Г., Казакевич В.С., Ковш И.Б., Лыткин А.П. *Квантовая электроника*, **10**, 1121 (1983).
13. Конев Ю.Б., Кочетов И.В., Певгов В.Г. *Письма в ЖТФ*, **3**, 733 (1977).
14. Курносоев А.К., Напартович А.П., Шнырев С.Л. *Квантовая электроника*, **34**, 1027 (2004).
15. Horn K.R., Oettinger P.E. *J. Chem. Phys.*, **54**, 3040 (1971).
16. Григорьян Г.М., Дымшиц Б.М., Ионих Ю.З. *Оптика и спектроскопия*, **65**, 686 (1988).
17. Caledonia G.V., Green V.D., Murphy R.E. *J. Chem. Phys.*, **71**, 4369 (1979).
18. Григорьян Г.М., Кочетов И.В. *Квантовая электроника*, **38**, 222 (2008).
19. Конев Ю.Б., Кочетов И.В., Певгов В.Г. *ЖТФ*, **48**, 977 (1978).
20. Напартович А.П., Новобранцев И.В., Старостин А.Н. *ЖПМТФ*, № 1, 3 (1977).
21. Treanor C.E., Rich J.W., Rehm R.G. *J. Chem. Phys.*, **48**, 1798 (1968).
22. Напартович А.П., Новобранцев И.В., Старостин А.Н. *Квантовая электроника*, **4**, 2125 (1977).