### АКТИВНЫЕ СРЕДЫ

PACS 33.20.Ea; 42.55.Lt

# O температурной зависимости столкновительных ширин линий лазерного перехода $10^00-00^01$ молекулы $CO_2$

К.И.Аршинов, М.К.Аршинов, В.В.Невдах

C помощью стабилизированного по частоте перестраиваемого  $CO_2$ -лазера измерены ненасыщенные коэффициенты поглощения в чистом углекислом газе и в бинарных смесях  $CO_2 - N_2$  и  $CO_2 - He$  при давлении 100 Тор в диапазоне температур 300-700 К. Для линии поглощения R(22) перехода  $10^00-00^01$  молекулы  $CO_2$  определены относительные коэффициенты столкновительного уширения буферными газами  $N_2$  и He и их температурные зависимости.

Ключевые слова: коэффициент поглощения, столкновительная ширина линий, углекислый газ, азот, гелий.

#### 1. Введение

Известно, что практически все технологические  $CO_2$ лазеры с любым типом возбуждения работают при давлениях активной среды, обеспечивающих однородное
уширение их линий усиления за счет столкновений рабочих молекул  $CO_2$  с другими атомами и молекулами активной среды [1-4].

Зависимость столкновительной ширины  $\Delta v_{\text{CO}_2}$  (полная ширина на половине максимума) спектральной линии молекулы  $\text{CO}_2$  от температуры газа T обычно описывается формулой [5]

$$\Delta v_{\text{CO}_2} = \gamma_{\text{CO}_2 - \text{CO}_2} p_{\text{CO}_2} (300 \text{ K}/T)^n, \tag{1}$$

где  $\gamma_{\rm CO_2-CO_2}$  — столкновительная ширина линии за счет столкновения молекул  ${\rm CO_2}$  между собой при давлении 1 Тор и температуре 300 К, или коэффициент столкновительного самоуширения для молекулы  ${\rm CO_2}$ ;  $p_{\rm CO_2}$  — давление углекислого газа. Показатель степени n в (1) зависит от механизма взаимодействия сталкивающихся молекул и для линий перехода  $10^00-00^01$  по разным данным составляет от 0.5 до 1 [5—12].

Известно также, что основными компонентами активных сред эффективных технологических  $CO_2$ -лазеров являются углекислый газ, азот и гелий в различных соотношениях при давлениях, при которых преобладают бинарные столкновения атомов и молекул [1]. Поэтому полная столкновительная ширина контура усиления  $\Delta v_{\rm g}$  линии лазерного перехода в данных условиях может быть представлена в виде суммы вкладов в уширение, даваемых парными столкновениями атомов и молекул основных компонентов, т. е. в виде

**К.И.Аршинов, М.К.Аршинов.** Институт технической акустики НАНБ, Белоруссия, 210023 Витебск, просп. Людникова, 13; e-mail: itaaki@yandex.ru

**В.В.Невдах.** Белорусский национальный технический университет, Белоруссия, 220013 Минск, ул. Я.Коласа, 22; e-mail: v.v.nev.@bk.ru

Поступила в редакцию 11 марта 2010 г.

$$\Delta v_{\rm g} \approx \Delta v_{\rm CO_2} + \Delta v_{\rm N_2} + \Delta v_{\rm He},$$
 (2)

где  $\Delta v_{N_2}$  и  $\Delta v_{He}$  – ширины, обусловленные столкновениями молекул  $CO_2$  с буферными молекулами  $N_2$  и атомами Не соответственно.

Для численных оценок ширины линии усиления таких  $CO_2$ -лазеров на наиболее сильном лазерном переходе  $00^01-10^00$  обычно используют формулу, полученную в работе [13] для линии P(20) этого перехода:

$$\Delta v_{\rm g} = \gamma_{\rm CO_2-CO_2}(\xi_{\rm CO_2} + b_{\rm N_2}\xi_{\rm N_2} + b_{\rm He}\xi_{\rm He})p_{\Sigma}\sqrt{300/T},$$
 (3)

где  $\xi_{\rm CO_2},\ \xi_{\rm N_2},\ \xi_{\rm He}$  — доли  ${\rm CO_2},\ {\rm N_2}$  и He в смеси;  $b_{\rm N_2}=\gamma_{\rm CO_2-N_2}/\gamma_{\rm CO_2-CO_2}=0.73$  и  $b_{\rm He}=\gamma_{\rm CO_2-He}/\gamma_{\rm CO_2-CO_2}=0.64$  — относительные коэффициенты столкновительного уширения линий молекул  ${\rm CO_2}$  молекулами и атомами буферных газов  ${\rm N_2}$  и He соответственно;  $p_{\Sigma}$  — давление газовой смеси  ${\rm CO_2}-{\rm N_2}$  — He.

То, что коэффициенты  $b_{\rm N_2}$  и  $b_{\rm He}$  входят в формулу (3) как константы, по существу означает признание одинаковости температурных зависимостей величин  $\Delta v_{\rm CO_2}$ ,  $\Delta v_{\rm N_2}$  и  $\Delta v_{\rm He}$  из (2), т. е. признание одинакового характера уширения спектральной линии при взаимодействии молекул  ${\rm CO_2}$  со столкновительными партнерами, обладающими различными свойствами, а это противоречит существующим представлениям о механизмах столкновительного уширения спектральных линий [5, 6].

Столкновительную ширину линии обычно определяют или непосредственно, измеряя форму линии поглощения с помощью перестраиваемого источника излучения, или измеряя ненасыщенный коэффициент поглощения (КП) на одной, например центральной, частоте линии поглощения при давлении, обеспечивающем столкновительно-уширенный контур. Измерение всего контура спектральной линии молекулы  $CO_2$  с высокой точностью является более сложной экспериментальной задачей, чем измерение КП на одной частоте. Для линий переходов  $[10^00,02^00]_{I,II}-00^01$  [3] задача облегчается тем, что в качестве зондирующего излучения можно использовать резонансное излучение стабилизированного по частоте  $CO_2$ -лазера, перестраиваемого по линиям этих же переходов.

Цель настоящей работы — определение относительных коэффициентов  $b_{\rm N_2}$  и  $b_{\rm He}$  столкновительного уширения линии поглощения R(22) перехода  $10^00-00^01$  молекулы  ${\rm CO_2}$  молекулами  ${\rm N_2}$  и атомами He соответственно в диапазоне температур 300-700 K, характерном для активных сред электроразрядных технологических  ${\rm CO_2}$ -лазеров.

## 2. Методика измерений и обсуждение полученных результатов

Методика основана на измерениях с помощью стабилизированного по частоте перестраиваемого  $CO_2$ -лазера КП на центральной частоте линии R(22) перехода  $10^00-00^01$  в чистом  $CO_2$  ( $\alpha_{CO_2}$ ) и в бинарных смесях  $CO_2-N_2$ ,  $CO_2-He$  ( $\alpha_{CO_2-M}$ ) с соотношениями компонентов  $CO_2:M=1:Y$  при давлениях чистого  $CO_2$  и бинарных смесей ( $p_\Sigma$ ) 100 Тор, обеспечивающих лоренцевские контуры линий поглощения.

Относительные коэффициенты столкновительного уширения линии  $b_{\rm M}$  буферными газами  $N_2$  и Не определялись из выражения

$$\frac{\alpha_{\text{CO}_2}}{\alpha_{\text{CO}_2-M}} = 1 + Yb_{\text{M}}.\tag{4}$$

Выбор линии R(22) обусловлен тем, что вкладом в КП на ее центральной частоте, который дают линии поглощения других, вышележащих переходов молекулы  $CO_2$ , при рассматриваемых в работе давлениях и температурах, можно пренебречь.

Следует также отметить, что при использовании данной методики исключены погрешности, обусловленные неопределенностями в значениях спектроскопических параметров, определяющих измеряемые КП [14].

Экспериментальная установка для измерения КП в газах по двухлучевой компенсационной схеме на линиях генерации стабилизированного по частоте  $CO_2$ -лазера, перестраиваемого по линиям основных лазерных переходов  $00^01-\left[10^00,02^00\right]_{\rm I,II}$ , была подробно описана в работах [15, 16]. Долговременная нестабильность частоты генерации лазера относительно центральной частоты линии генерации, резонансной центральной частоте линии поглощения, не превышала  $\pm 0.5~\rm M\Gamma L$ . Это позволяло при реализуемых экспериментально ширинах линий поглощения с высокой точностью считать, что измерения КП проводились на центральных частотах линий поглощения.

Погрешность определения давления газа  $\Delta p$  составляла  $\pm 0.5$  Тор. Температура газа в измерительной кювете поддерживалась с погрешностью  $\pm 0.4$  K (в диапазоне 293 K  $\leqslant$   $T \leqslant$  420 K) и  $\pm 0.9$  K (в диапазоне 470 K  $\leqslant$   $T \leqslant$  700 K).

На рис.1 представлены результаты измерений  $\alpha_{\text{CO}_2}$  в чистом углекислом газе при давлении  $p_{\text{CO}_2}=100$  Тор в диапазоне температур 300-700 К. Измеренные коэффициенты  $\alpha_{\text{CO}_2-M}$  в бинарных смесях  $\text{CO}_2-\text{N}_2$  и  $\text{CO}_2-\text{He}$  с различными соотношениями компонентов при давлении смеси  $p_{\Sigma}=100$  Тор и в том же температурном диапазоне показаны на рис.2 и 3 соответственно.

Для каждой температуры, при которой проводились измерения, в соответствии с формулой (4) строилась зависимость отношения  $\alpha_{\text{CO}_2}/\alpha_{\text{CO}_2-\text{M}}$  от величины Y. Значения коэффициентов  $b_{\text{N}_2}$  и  $b_{\text{He}}$  определялись по наклону соответствующих прямых.

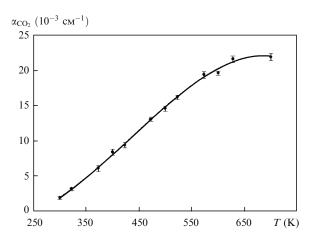


Рис.1. Температурная зависимость КП в чистом  ${\rm CO_2}$  при давлении 100 Тор на линии  ${\rm 10R(22)}$ .

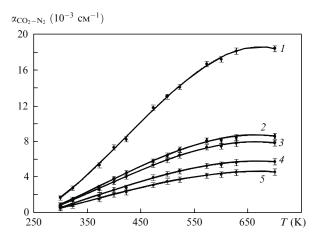


Рис.2. Температурные зависимости КП в газовой смеси  $CO_2: N_2 = 1: Y$  при давлении 100 Тор на линии 10R(22) для Y = 0.19 (I), 1.5 (I), 1.78 (I), 3 (I) и 4 (I).

На рис.4,a в качестве примера приведены зависимости для смеси  $\mathrm{CO_2}-\mathrm{N_2}$  при крайних значениях исследованного диапазона температур — 300 и 700 К. Из них получено, что  $b_{\mathrm{N_2}}=0.74\pm0.02$  при T=300 К и  $0.99\pm0.04$  при T=700 К. Аналогичные зависимости для смеси  $\mathrm{CO_2}-\mathrm{He}$  представлены на рис.4, $\delta$ . Из них получено, что  $b_{\mathrm{He}}=0.58\pm0.03$  при T=300 К и  $0.88\pm0.04$  при T=700 К.

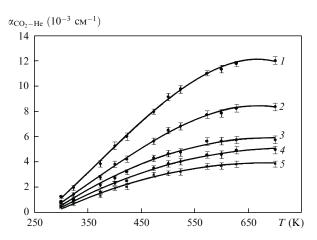


Рис.3. Температурные зависимости КП в газовой смеси  $CO_2$ : He = 1: Y при давлении 100 Тор на линии 10R(22) для Y = 1 (I), 2 (2), 3 (3), 4 (4) и 5 (5).

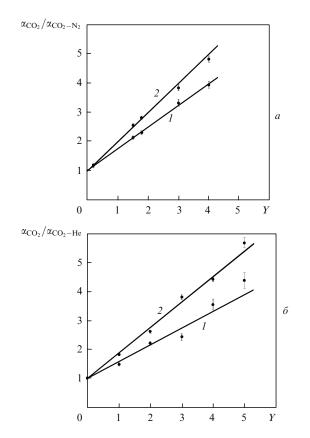


Рис.4. Зависимости отношения коэффициентов поглощения  $\alpha_{\text{CO}_2}/\alpha_{\text{CO}_2-M}$  от отношения концентраций компонентов бинарной смеси  $Y = [M]/[\text{CO}_2]$  для  $M = N_2$  (a) и M = He (б) при температуре 300 (1) и 700 K (2).

Таким образом, экспериментальные данные, представленные на рис.4, ясно показывают, что в исследованном диапазоне температур  $300-700~\rm K$  отношения  $\alpha_{\rm CO_2}/\alpha_{\rm CO_2-N_2}$  и  $\alpha_{\rm CO_2}/\alpha_{\rm CO_2-He}$ , а значит, и коэффициенты  $b_{\rm N_2}$  и  $b_{\rm He}$  увеличиваются с ростом температуры газа.

Следует подчеркнуть, что автор работы [13], предложивший формулу (3), проводил измерения ширины линии P(20) перехода  $10^00-00^01$  в чистом  $CO_2$  и в бинарных смесях  $CO_2:N_2=1:1$  и  $CO_2:He=1:1$  методом оптоакустической спектроскопии только при одной температуре  $-T=298\,$  К. Позже в [17] по методике, аналогичной используемой в настоящей работе, были измерены коэффициенты  $b_{N_2}$  и  $b_{He}$  для нескольких линий, в том числе и для линии R(22) в интервале температур 300-650 К. При T=300 К авторы [17] получили  $b_{N_2}=0.81\pm0.04$  и  $b_{He}=0.70\pm0.04$ . Видно, что, хотя эти коэффициенты несколько больше полученных в настоящей работе, количественное согласие можно считать достаточно хорошим.

В то же время качественное сравнение результатов настоящей работы и работы [17], т. е. сравнение поведения коэффициентов  $b_{\rm N_2}$  и  $b_{\rm He}$  при изменении температуры, позволяет сделать принципиально различные выводы. Так, авторы [17] в исследованном ими диапазоне температур 300-650 К наблюдали только небольшие вариации  $b_{\rm N_2}$  и  $b_{\rm He}$ , т. е. они установили, что эти коэффициенты практически не меняются. Характер же изменения полученных в настоящей работе коэффициентов  $b_{\rm N_2}$  и  $b_{\rm He}$  при изменении температуры иллюстрирует рис. 5. Видно, что до температуры  $T\sim550$  К коэффициент  $b_{\rm N_2}$  практически не меняется, что согласуется с результатами работы [17],

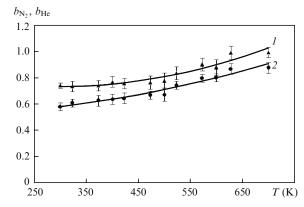


Рис.5. Температурные зависимости относительных коэффициентов столкновительного уширения линии поглощения 10R(22) молекулы  $CO_2$  молекулами  $N_2$  (I) и атомами He (2).

а при  $T>550~{\rm K}$  наблюдается его явное увеличение. Для коэффициента  $b_{{\rm He}}$  слабая зависимость от температуры имеет место и в интервале  $T=300-550~{\rm K}.$ 

Таким образом, наши измерения однозначно показывают, что коэффициенты  $b_{\rm N_2}$  и  $b_{\rm He}$  являются функциями температуры, причем различными. Это означает, что широко используемая формула (3) при T>550 К оказывается некорректной. В соответствии с физическим смыслом выражения (2), в правильной формуле каждое слагаемое должно иметь собственную зависимость от температуры, точно так же, как собственные температурные зависимости имеют константы скорости колебательной релаксации верхнего лазерного уровня  $00^01$  молекулы  ${\rm CO}_2$  в чистом  ${\rm CO}_2$  и в бинарных смесях  ${\rm CO}_2-{\rm N}_2$  и  ${\rm CO}_2$  — Не за счет столкновений (см., напр., [18]).

Для мощных технологических электроразрядных  $CO_2$ -лазеров, работающих в режиме быстрой прокачки активной среды, оптимальными оказываются активные среды, в которых содержание молекул  $CO_2$  намного меньше, чем молекул  $N_2$  и атомов He. Это смеси  $CO_2:N_2:He\approx 1:(5-22):(5-22)$  или смеси с еще меньшей долей рабочих молекул (см., напр., [19-22]). При получении максимальной лазерной мощности температура активной среды в данных лазерах достигает 600-700 K (см., напр., [23-25]). Простые оценки показывают, что столкновительные ширины линий усиления таких  $CO_2$ -лазеров, полученные по формуле (3) и с использованием результатов настоящей работы, могут различаться больше чем на 100%.

#### 3. Заключение

С помощью стабилизированного по частоте перестраиваемого  $\mathrm{CO}_2$ -лазера измерены ненасыщенные КП в чистом углекислом газе и в бинарных смесях  $\mathrm{CO}_2 - \mathrm{N}_2$  и  $\mathrm{CO}_2 - \mathrm{He}$  при общем давлении 100 Тор в диапазоне температур 300-700 К на линии R(22) перехода  $10^00-00^01$  молекулы  $\mathrm{CO}_2$ . Определены относительные коэффициенты столкновительного уширения  $b_{\mathrm{N}_2}$  и  $b_{\mathrm{He}}$  буферными газами  $\mathrm{N}_2$  и He. Установлено, что эти коэффициенты являются функциями температуры газа.

- Siegman A.E. Lasers (Mill Valey, Cal.: University Science Book, 1986).
- 2. Hall D.R., Hill C.A., in *Handbook of Molecular Lasers* (New York: Marcell Dekker, 1987, Ch.3, p. 328).
- 3. Виттеман В. *СО*<sub>2</sub>-лазер (М.: Мир, 1990).
- 4. Plinski E.F., Abramski K.M. DC-excited Continuous-wave Conventional and RF-excited Waveguide CO<sub>2</sub> Lasers, Gas Lasers (New York:

- CRC Press, 2007, p. 239).
- Ачасов О.В., Кудрявцев Н.Н., Новиков С.С., Солоухин Р.И., Фомин Н.А. Диагностика неравновесных состояний в молекулярных лазерах (Минск.: Наука и техника, 1985).
- Стариков В.И., Лаврентьева Н.Н. Столкновительное уширение спектральных линий поглощения молекул атмосферных газов (Томск: изд-во Института оптики атмосферы СО РАН, 2006).
- Буланин М.О., Булычев В.П., Ходос Э.Б. Оптика и спектроскопия, 48, 732 (1980).
- 8. Осипов В.М. Оптика и спектроскопия, 63, 1013 (1987).
- 9. Arie E., Lacome N., Levy A. Appl. Opt., 26, 1636 (1987).
- 10. Gross L.A., Griffiths P.R. Appl. Opt., 26, 2250 (1987).
- 11. Rosenmann L., Perrin M.Y., Taine J. J. Chem. Phys., 88, 2995 (1988).
- Аршинов К.И., Лешенюк Н.С. Квантовая электроника, 24, 517 (1997).
- 13. Abrams R.L. Appl. Phys. Lett., 25, 609 (1974).

- Ельяшевич М.А. Атомная и молекулярная спектроскопия (М.: ГИФМЛ, 1962).
- 15. Аршинов К.И., Каблуков Н.Г., Лешенюк Н.С. ПТЭ, 1, 237 (1991).
- 16. Аршинов К.И., Каблуков Н.Г., Тихонов Ф.В. ПТЭ, 1, 103 (1996).
- 17. Robinson A.M., Weiss J.S. Can. J. Phys., 60, 1656 (1982).
- 18. Невдах В.В., Орлов Л.Н., Лешенюк Н.С.  $\mathcal{K}\Pi C$ , **70**, 246 (2003).
- 19. Nath A.K., Kumar M. *IEEE J. Quantum Electron.*, **29**, 1199 (1993). 20. Markillie G.A.J., Baker H.J., Betterton J.G., Hall D.R. *IEEE J.*
- Quantum Electron., **35**, 1134 (1993).
  21. Chang S.-H., Cheng C.-C., Chang M.-F., et al. *Jpn. J. Appl. Phys.*
- Pt.1, 39, 82 (2000).
- 22. Невдах В.В., Ганджали Монире. ЖПС, 71, 490 (2004).
- 23. Harry J.E., Evans D.R. IEEE J. Quantum Electron., 24, 503 (1988).
- 24. Abramski K.M., Colly A.D., Baker H.J., Hall D.R. *IEEE J. Quantum Electron.*, 32, 340 (1996).
- 25. Невдах В.В. Квантовая электроника, 31, 525 (2001).