

УДК 535.37 : 546.15

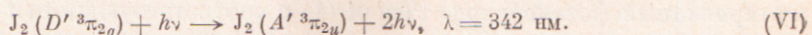
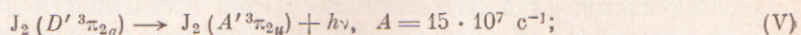
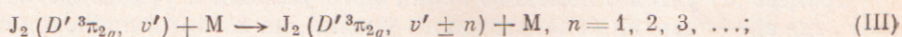
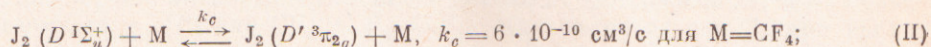
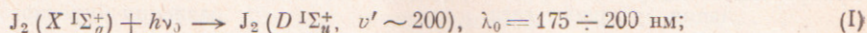
КВАНТОВЫЙ ВЫХОД ЛЮМИНЕСЦЕНЦИИ МОЛЕКУЛЯРНОГО ИОДА, ВОЗБУЖДАЕМОГО ВУФ ИЗЛУЧЕНИЕМ

Дацюк В. В., Измайлов И. А., Кочелав В. А.

Теоретически исследована электронно-колебательная кинетика в активной среде подного лазера. Приведены выражения для квантового выхода η стимулированного и спонтанного излучений. Из сравнения теоретического расчета с экспериментальными данными определены константы тушения и VT -релаксации $J_2(D')$. Исследована зависимость η от давления различных буферных газов. Даны рекомендации по оптимизации параметров $J_2(D'-A')$ -лазера.

$J_2(D')$ -лазер с накачкой вакуумным ультрафиолетом является одним из наиболее перспективных лазеров ближнего УФ диапазона [1]. Несмотря на многочисленные исследования кинетики образования $J_2(D')$ [1-6], роль некоторых процессов (колебательная релаксация, электронная конверсия) выяснена неудовлетворительно. В настоящей работе теоретически исследована электронно-колебательная кинетика в активной среде подного лазера. Приведены выражения для квантового выхода η стимулированного и спонтанного излучений. Из сравнения теоретического расчета с экспериментальными данными определены константы тушения и VT -релаксации $J_2(D')$. Исследована зависимость η от давления различных буферных газов.

Электронно-колебательная кинетика в смеси J_2/M включает в себя следующие процессы: возбуждение высоколежащих колебательных уровней $J_2(D^1\Sigma_u^+)$ (I), электронную конверсию между состояниями $J_2(D)$ и $J_2(D'^3\pi_{2g})$ (II), колебательную релаксацию (III), тушение (IV), спонтанное (V) и стимулированное (VI) излучения



По данным [6], самым быстрым процессом является (II), в котором энергия от $J_2(D^1\Sigma_u^+)$ передается к $J_2(D'^3\pi_{2g})$ через группу промежуточных «темных» состояний, заселенностью которых можно пренебречь при давлении CF_4 выше 30 Тор [6] и давлении Ar выше 100 Тор [7]. Можно показать, что в этом случае колебательное распределение в D - и D' -состояниях описывается одним кинетическим уравнением. Возбужденные состояния J_2 характеризуются небольшими колебательными квантами $\hbar\omega$ и значительным ангармонизмом. Для

таких систем хорошо выполняется диффузионное приближение [8] и кинетическое уравнение имеет вид

$$\frac{d}{d\varepsilon} j(\varepsilon) + \frac{1}{\tau_Q} f(\varepsilon) = 0, \quad (1)$$

где $f(\varepsilon)$ — функция распределения по колебательной энергии ε , $j(\varepsilon) \equiv -\frac{T}{\tau_{VT}} \times \times b(\varepsilon) \rho(\varepsilon) \left[\frac{d}{d\varepsilon} \left(\frac{f}{\rho} \right) + \frac{f}{T\rho} \right]$, T — температура, $\rho(\varepsilon)$ — плотность состояний, τ_Q — время тушения люминесценции, значение τ_{VT} введено так, что оно равно времени колебательной релаксации гармонических осцилляторов в области низких колебательных уровней ($b(\varepsilon) = \varepsilon$), $\tau_{VT}^{-1} \equiv k_{VT} [M]$, $\tau_Q^{-1} \equiv A + k_Q [M]$, $[M]$ — концентрация молекул буферного газа M . Аппроксимируем $b(\varepsilon)$, $\rho(\varepsilon)$ выражениями из [8]: $b(\varepsilon) = 2D \sqrt{1 - \frac{\varepsilon}{D}} \left(1 - \sqrt{1 - \frac{\varepsilon}{D}} \right)$, $\rho(\varepsilon) = \left(\hbar\omega \sqrt{1 - \frac{\varepsilon}{D}} \right)^{-1}$, D — энергия диссоциации.

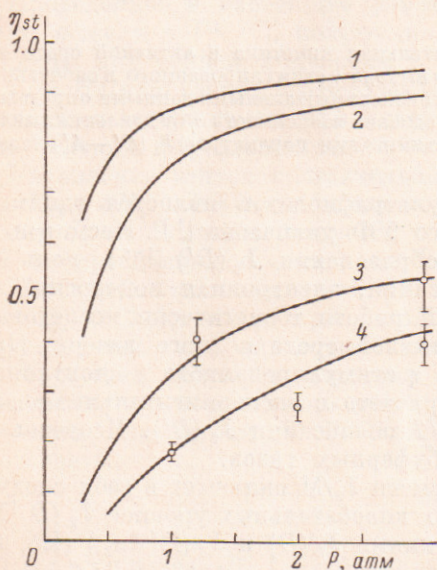


Рис. 1. Зависимость квантового выхода стимулированного излучения $I_2 (D' \rightarrow A')$ от давления буферного газа.

1 — C_2F_6 , 2 — CF_4 , 3 — SF_6 , 4 — Ar .

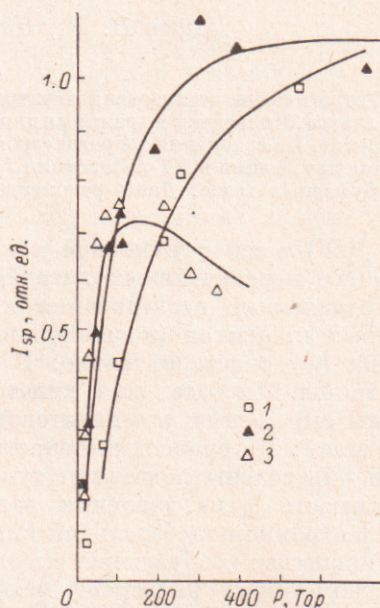


Рис. 2. Зависимость интенсивности спонтанной люминесценции $I_2 (D' \rightarrow A')$ от давления буферного газа.

1 — CF_4 , 2 — C_2F_6 , 3 — C_6F_{12} .

Процесс (1) учтем с помощью граничного условия к уравнению (1): $j(\varepsilon_*) = W$, где ε_* — энергия колебательного уровня, на который происходит накачка, W — темп накачки (в $см^{-3}/с$). Если стимулированное излучение отсутствует, второе граничное условие имеет вид: $j(0) = 0$. Однако при наличии (VI) в приближении насыщенной мощности и нулевой заселенности нижнего лазерного уровня имеем $f(\varepsilon_0) = 0$, где ε_0 — энергия уровня, с которого происходит стимулированный фотопереход. Решая (1) с соответствующими граничными условиями, мы определили $f(\varepsilon)$ и нашли η — отношение темпа спонтанного или стимулированного излучения к темпу накачки

$$\eta_{sp} = -\frac{Af(\varepsilon_0)}{\rho(\varepsilon_0)j(\varepsilon_*)} = A\tau_Q \frac{\hbar\omega}{T} e^{-\frac{\varepsilon_0}{T}} \Theta \Gamma(1+z) F\left(z, 1; \frac{\varepsilon_0}{T}\right), \quad (2)$$

$$\Theta \equiv \exp \left\{ -\tau_{VT} \int_T^{\varepsilon_*} \frac{d\varepsilon}{\tau_Q b(\varepsilon)} \right\} = \left[\frac{T}{2D \left(1 - \sqrt{1 - \frac{\varepsilon_*}{D}} \right)} \right]^z,$$

$$\eta_{st} = \frac{j(\varepsilon_0)}{j(\varepsilon_x)} = \eta_{sp} (A\tau_Q)^{-1} \left[(1-x) \frac{F(x-1, 1, \frac{\varepsilon_0}{T})}{F(x, 1, \frac{\varepsilon_0}{T})} + \frac{\Phi(x-1, 1, \frac{\varepsilon_0}{T})}{\Phi(x, 1, \frac{\varepsilon_0}{T})} \right]. \quad (3)$$

Здесь $x \equiv \tau_{VT}/\tau_Q$; $F(a, 1; x)$, $\Phi(a, 1; x)$ — вырожденная гипергеометрическая функция 1-го и 2-го рода соответственно. Формулы (2), (3) применимы в случае слабого тушения $x \ll 1$. Их можно использовать и при τ_Q , зависящем от ε . Тогда параметр x определяется временем тушения нижних колебательных уровней.

Зависимость интенсивности стимулированной люминесценции $J_2(D' \rightarrow A')$ от давления Ar, SF₆ исследована в [4]. Согласно [5], $k_{VT}(\text{Ar}) = 2 \cdot 10^{-11}$ см³/с; $k_Q(\text{SF}_6) = 3 \cdot 10^{-12}$ см³/с [4]. Значения η_{st} из [4] и значения, вычисленные по (3), приведены на рис. 1. Необходимые для расчетов константы скорости $k_Q(\text{Ar}) = 1.5 \cdot 10^{-12}$ см³/с и $k_{VT}(\text{SF}_6) = 4 \cdot 10^{-11}$ см³/с определены из согласования экспериментальных и теоретических значений η_{st} . Интенсивность спонтанной люминесценции $J_2(D' \rightarrow A') - J_{sp}$ измерена в [2, 3]. В [1] приведена зависимость J_{sp} от давления Ar, Kr, Xe. С помощью $k_{VT}(\text{Ar}) = 2 \cdot 10^{-11}$ см³/с, $k_Q(\text{Ar}) = 1.5 \cdot 10^{-12}$ см³/с найдем, что при $P = 800$ Тор для переходов с $v' = 0-4$ $\eta_{sp} = 0.21$ ($x = 0.4$). Экспериментальное значение $\eta_{sp} = 0.23$. При низких P не выполняется условие $x < 1$ и (2), (3) оказываются неприменимыми. Таким образом, расчет по формулам (2), (3) при $x \ll 1$ хорошо согласуется с экспериментальными данными по стимулированной и спонтанной люминесценции $J_2(D' \rightarrow A')$. Отметим также, что при $x < 1$ ($P > 400$ Тор) вид функции распределения по колебательной энергии $f(\varepsilon)$, а следовательно, и форма полосы $D' \rightarrow A'$ перестают меняться при повышении давления.

Кинетические параметры $J_2(D')$

Газ	$k_{VT} \times 10^{11}$ см ³ /с	$k_Q \times 10^{12}$ см ³ /с
Ar	2	1.5
SF ₆	4	3
CF ₄	10	0.15
C ₃ F ₈	22	0.6
C ₅ F ₁₂	36	9

Необходимость создания эффективных лазеров на $J_2(D')$ определяет интерес к исследованию смесей J_2/M с $k_{VT} \gg k_Q$. Последнее неравенство, по-видимому, выполняется для галогенозамещенных углеводородов. Зависимость J_{sp} от давления CF₄, C₃F₈, C₅F₁₂ измерена в [3]. Согласно [3], при низком давлении ($[M] \ll Ak_Q^{-1}$) $\eta_{sp} = 1 + A/k[M]$, где k — определяемая из эксперимента величина. Сравнивая эту зависимость $\eta_{sp}(P)$ с (2), мы определили k_{VT} (см. таблицу). Затем из согласования результатов вычислений с экспериментом в области высоких давлений ($P \approx 700$ Тор) были найдены k_Q . Как видно из рис. 2, значения J_{sp} , вычисленные по (2) для люминесценции D' , $v' = 0-4 \rightarrow A'$, хорошо согласуются с экспериментальными данными. Найденные k_{VT} и k_Q позволили рассчитать $\eta_{st}(P)$ для CF₄, C₃F₈, C₅F₁₂. Как видно из рис. 1, при увеличении P до 1 атм $\eta_{st}(v' = 0)$ быстро возрастает. Однако при $P > 1.5$ атм дальнейшее повышение давления не приводит к заметному увеличению η_{st} . Тем самым оптимальным для $J_2(D')$ лазера давлением газа-разбавителя является 1.5 атм.

Таким образом, на квантовую эффективность иодного лазера существенное влияние оказывают колебательная релаксация и тушение возбужденного состояния. Предельная эффективность, равная 0.8—0.9, может быть достигнута при использовании в качестве буферного газа CF₄, C₃F₈ и давлении около 1.5 атм.

В заключение благодарим В. С. Зуева и Л. Д. Михеева за полезные обсуждения.

Литература

- [1] Бибинов Н. К., Виноградов И. П., Зуев В. С., Канаев А. В., Михеев Л. Д., Ставровский Д. Б., Широких А. П. — Успехи фотоники, 1983, т. 8, с. 51.
- [2] Бибинов Н. К., Виноградов И. П. — Опт. и спектр., 1983, т. 54, в. 2, с. 232.
- [3] Бабошин В. Н., Михеев Л. Д., Павлов А. Б., Фоканов В. П., Ходарковский М. А., Широких А. П. — Квант. электрон., 1981, т. 8, с. 1138.

- [4] Shaw M. J., Edwards C. B., O'Neill J., Fotakis C., Donovan J. — Appl. Phys. Lett., 1980, v. 37, p. 346.
- [5] Sauer M. C. Jr., Mulac W. A., Cooper R., Grieser F. — J. Chem. Phys., 1976, v. 64, p. 4587.
- [6] Donovan R. J., O'Grady B. U., Lain L. Fotakis C. — J. Chem. Phys., 1983, v. 78, p. 3727.
- [7] Tellinghuisen J., Whyte A. R., Phillips L. F. — J. Phys. Chem., 1984, v. 88, p. 6084.
- [8] Сафарян М. Н. — ПМТФ, 1974, № 2, с. 38.

Поступило в Редакцию 12 марта 1986 г.
