

Роль оптических переходов между ионными и ридберговскими состояниями в KrF-лазере

В.В. Дацюк

Верхний лазерный уровень KrF-лазера рассматривается как кластер нескольких сотен колебательно-вращательных уровней электронного состояния В, столкновительно перемешанного с близким ионным состоянием С. При этом состояние KrF (С) опустошается вследствие оптических переходов в более высокое ридберговское состояние. Применение этой концепции позволяет объяснить экспериментальные данные по пикосекундной динамике коэффициента усиления света. Обсуждается возможность использования KrF-лазера как усилителя излучения с длиной волны 120 нм.

Ключевые слова: KrF-лазер, молекулярная кинетика, ридберговское состояние.

1. Введение

Динамика коэффициента усиления света g в активной среде KrF-лазера после насыщения короткими световыми импульсами была изучена экспериментально более десяти лет тому назад [1–4]. Восстановление g , как было обнаружено, имеет две стадии – быструю и медленную:

$$g(t) = g_{st} - \Delta g \left[R_f \exp\left(-\frac{t}{\tau_f}\right) + R_s \exp\left(-\frac{t}{\tau_s}\right) \right], \quad (1)$$

где время $t \geq 0$; g_{st} – коэффициент усиления слабого сигнала при $t < 0$; $R_f + R_s = 1$; $\Delta g = g_{st} - g(0)$; индексы f и s соответствуют быстрой и медленной стадиям восстановления. Быстрое восстановление g в разных газовых смесях протекало со временем $\tau_f \approx 60$ пс. Согласно [5, 6] время медленного восстановления τ_s – это время жизни эксимерных молекул KrF(B, C) $\tau_u \approx 2$ нс. Подобные процессы восстановления g наблюдались и для других эксимеров галогенидов инертных газов, например XeCl [2, 7] и XeF [4].

Пикосекундная динамика восстановления коэффициента усиления света в эксимерном лазере объяснялась следующими процессами: расселением нижнего лазерного уровня, вращательной релаксацией в оптически-активном электронном состоянии B и столкновительным перемешиванием состояний B и C [7]. Каждый из этих процессов обеспечивает вклад в τ_f , примерно равный времени газокинетических столкновений τ_0 . Действительно, $\tau_f \approx \tau_0$ согласно табл.1, суммирующей экспериментальные данные по параметрам быстрого восстановления g . В экспериментах [1, 2] коэффициент быстрого восстановления R_f почти не зависел от длительности насыщающего светового импульса t_p при $0.25 < t_p < 5$ пс. В эксперименте [3] использовались сходные газовые смеси и

Табл.1. Параметры быстрого восстановления коэффициента усиления света для KrF.

Буферный газ	Давление (бар)	t_p (пс)	τ_f (пс)	R_f	Литература
He	2.3	5	63	0.20	[1]
He	2.3	0.26	54 ± 8	0.25 ± 0.04	[2]
He	2.5	1	67	0.10	[3]
Ne	2.5	1	67	0.10	[3]

Примечание: t_p – длительность насыщающего светового импульса.

такая же, как и в [1, 2], накачка (электрический разряд) при $t_p = 1$ пс. Следовательно, R_f должно было бы составлять около 0.25. Однако измеренное $R_f = 0.10$ оказалось в два раза ниже. Это несоответствие не было объяснено, несмотря на создание сложных моделей KrF-лазера [8].

В настоящей работе делается попытка понять кинетику образования верхнего лазерного уровня KrF-лазера в пикосекундном масштабе времени. Вначале мы оценим вклад в R_f каждого упомянутого выше кинетического процесса. Такое рассмотрение не позволяет объяснить экспериментальные данные [1–4], теория согласуется с [1–4] лишь благодаря новым экспериментальным данным [9]. А именно, в [9] наблюдались изменения спектральной зависимости g лазерного усилителя на KrF в условиях, когда состояние KrF (B) опустошалось насыщающим световым импульсом, а населенность состояния KrF (C) оставалась высокой. На основании этих, а также других экспериментальных данных были идентифицированы полосы поглощения в спектре усиления KrF-лазера.

Согласно [9] узкополосное поглощение с максимумом на длине волны $\lambda_0 = 248.91$ нм существует благодаря переходу с нулевого колебательного уровня KrF (C) в ридберговское состояние $^2\Pi$, вероятнее всего, в состояние $F^2\Pi$ (см. рис.1). Широкополосное поглощение с максимумом на $\lambda_0 = 247.6$ нм обусловлено переходом из состояния KrF (B) в связанное ридберговское состояние KrF ($E^2\Sigma$). Проведенный в настоящей работе анализ пикосекундной динамики коэффициента усиления света в KrF-лазере можно рассматривать как дополнительное подтверждение модели [9]. Данные табл.1 позволяют оце-

Киевский национальный университет им. Тараса Шевченко, физический факультет, Украина, 01033 Киев, ул. Владимирская, 64

Поступила в редакцию 9 ноября 2000 г., после доработки – 19 февраля 2001 г.

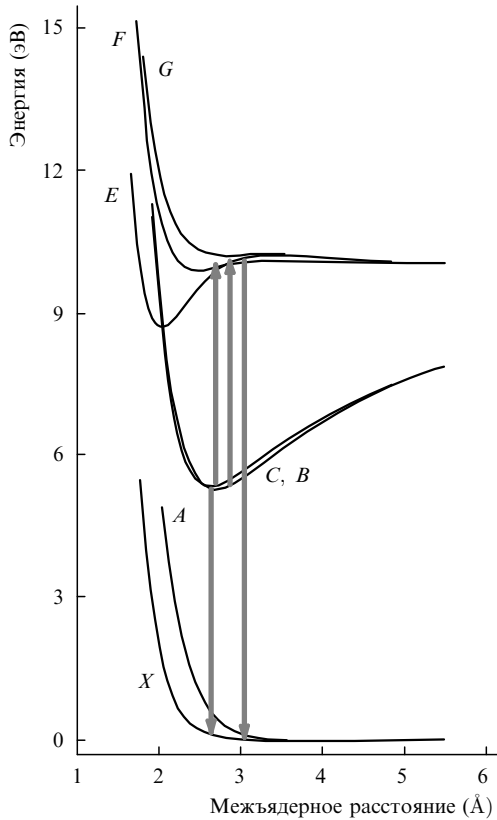


Рис.1. Электронные термы эксимерной молекулы Krf из [10] и схема основных оптических переходов.

нить число эксимеров Krf в состоянии F, переведенных из состояния C насыщающим световым импульсом. Как будет показано ниже, это число оказывается большим, сравнимым с числом фотопереходов Krf (B → X).

2. Расселение нижнего лазерного уровня

Для эксимерного лазера на Krf излучательный переход B → X оканчивается на отталкивательной части электронного терма Krf (X) [11]. Наклоны потенциальных кривых Krf (X) и Krf (B) в данной области межъядерных расстояний примерно одинаковы. Следовательно, время разлета образованных молекул Krf (X) не должно превышать периода колебаний эксимера Krf (B), равного 0.1 пс. Действительно, в литературе время распада нижнего лазерного уровня Krf составляет 17 фс [8, 12]. Поскольку это намного меньше, чем t_p , расселение нижнего лазерного уровня, очевидно, не влияет на пикосекундную динамику Krf-лазера.

3. Влияние вращательной релаксации

Для исследования влияния вращательной релаксации на g изучим два вопроса: как сильно зависит коэффициент усиления света от вращательного распределения и как сильно изменяется вращательное распределение при насыщении Krf-лазера короткими импульсами.

Для того чтобы найти ответ на первый вопрос, было вычислено сечение $\sigma_{v,j}(\lambda)$ вынужденного излучения для переходов с различных вращательных уровней j нижних колебательных состояний v молекул Krf (B) (здесь и далее λ – длина волны перехода). В расчетах использовались потенциалы состояний B и X и функции дипольного

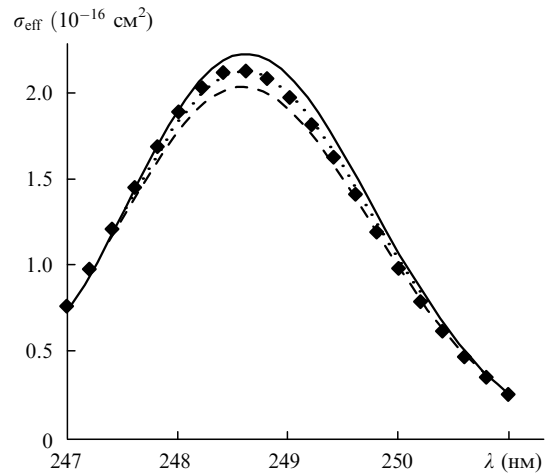


Рис.2. Зависимости эффективного сечения вынужденного излучения от длины волны, вычисленные для колебательной температуры $T_v = 430$ К и вращательной температуры $T_r = 300$ (сплошная кривая), 600 (пунктирная кривая) и 900 К (штриховая кривая). Точками показана эта же зависимость при $T_v = 500$ К и $T_r = 300$ К.

момента μ перехода B → X из [11]. Максимальное $\mu = 2.8$ Д было взято из работы [13]. С помощью найденных функций $\sigma_{v,j}(\lambda)$ было определено эффективное сечение вынужденного излучения

$$\sigma_{\text{eff}}(\lambda) = \frac{\sum_{v=0}^4 \sigma_v(\lambda) n_v}{\sum_{v=0}^4 n_v}, \quad \sigma_v(\lambda) = \sum_j p_j \sigma_{v,j}(\lambda). \quad (2)$$

Здесь σ_v – сечение вынужденного излучения для перехода с колебательного уровня v с населенностью n_v ; p_j – населенность вращательного уровня.

Вычисления были проведены для различных вращательных распределений при постоянном колебательном распределении. Для последнего использовалось следующее аналитическое выражение [14]:

$$n_v = a \mathcal{F} \left(\kappa, 1; \frac{\varepsilon_v}{T} \right) \exp \left(-\frac{\varepsilon_v}{T} \right), \quad (3)$$

где a – константа; \mathcal{F} – вырожденная гипергеометрическая функция первого рода; ε_v – колебательная энергия; T – газовая температура в энергетических единицах; $\kappa \equiv \tau_v / \tau_u$; τ_v – время колебательной релаксации; использованное характерное значение $\kappa = 0.3$ соответствует колебательной температуре $T_v = T / (1 - \kappa) \simeq 430$ К. В расчетах, проведенных для разных вращательных температур T_r , учитывалось больцмановское заселение 150 вращательных уровней. Согласно рис.2 значительное увеличение T_r от 300 до 900 К приводит к уменьшению максимума σ_{eff} всего на 8 %. Кроме того, рис.2 показывает, что зависимость $\sigma_{\text{eff}}(\lambda)$ от колебательной температуры также является слабой. Таким образом, вращательное распределение в каждом колебательном состоянии Krf (B) не влияет на коэффициент усиления света

$$g(\lambda) = \sigma_{\text{eff}}(\lambda) \sum_{v=0}^4 n_v.$$

Сравним теперь скорости изменения n_0 и $\langle \varepsilon \rangle$, где

$$\langle \varepsilon \rangle = \frac{1}{n_0} \sum_j \varepsilon_{0,j} P_{0,j}$$

– средняя вращательная энергия эксимеров КгF ($B, v = 0$); $\varepsilon_{v,j}$ и $P_{v,j}$ – энергия колебательно-вращательного уровня КгF (B, v, j) и его населенность. При распространении импульса света населенность $P_{v,j}$ уменьшается по закону

$$\frac{dP_{v,j}}{dt} = -c \int \sigma_{v,j}(\lambda) \rho(\lambda) d\lambda P_{v,j},$$

где c – скорость света; $\rho(\lambda) d\lambda$ – плотность фотонов с длиной волны, лежащей в интервале от λ до $\lambda + d\lambda$. Скорости изменения n_0 и $\langle \varepsilon \rangle$ зависят от $\rho(\lambda)$ и задаются следующими уравнениями:

$$\frac{1}{n_0} \frac{dn_0}{dt} = -c \int \sigma_0(\lambda) \rho(\lambda) d\lambda, \quad (4)$$

$$\frac{1}{\langle \varepsilon \rangle} \frac{d\langle \varepsilon \rangle}{dt} = -\frac{1}{n_0} \frac{dn_0}{dt} - \frac{c \sum_j \int \sigma_{0,j}(\lambda) \rho(\lambda) d\lambda \varepsilon_{0,j} P_{0,j}}{\sum_j \varepsilon_{0,j} P_{0,j}}.$$

Для простоты правые части этих уравнений были вычислены при $t = 0$ с использованием гауссова распределения

$$\rho(\lambda) = \rho_0 \exp \left[-4 \ln 2 \left(\frac{\lambda - \lambda_0}{\Delta\lambda} \right)^2 \right] \quad (5)$$

при $\lambda_0 = 248.5$ нм [1] и ширине линии излучения $\Delta\lambda \leq 1$ нм. Для указанных значений параметров было найдено

$$\frac{1}{\langle \varepsilon \rangle} \frac{d\langle \varepsilon \rangle}{dt} \simeq -0.035 \frac{1}{n_0} \frac{dn_0}{dt}.$$

Из полученного соотношения следует, что изменением вращательной температуры $T_r = \langle \varepsilon \rangle$ можно пренебречь. Действительно, если n_0 уменьшается в e раз, то вращательная температура КгF ($B, v = 0$) повысится от 300 К до примерно 310 К. Такое увеличение T_r , согласно рис.2, не повлияет на сечение вынужденного излучения. Таким образом, вращательная релаксация в КгF (B) не играет заметной роли в пикосекундной динамике усиления света в КгF-лазере.

Поскольку расселением нижнего лазерного уровня и вращательной релаксацией КгF (B) можно пренебречь, пикосекундная динамика g объясняется перемешиванием состояний КгF (B) и КгF (C) в столкновениях с атомами буферного газа [8].

4. Столкновительное перемешивание КгF (B) и КгF (C)

Обозначим суммарную населенность оптически-активных колебательно-вращательных уровней КгF (B) как θN . Эти состояния находятся в тепловом равновесии с соседними колебательно-вращательными уровнями КгF (C), которые имеют суммарную населенность $(1 - \theta)N$. Если удалить часть эксимеров из состояния B , то столкновения эксимеров с атомами буферного газа приведут к быстрому восполнению населенности КгF (B) из резервуарного состояния C . Рассматривая баланс населенностей КгF (B) и КгF (C), можно получить

$$R_f = 1 - \theta. \quad (6)$$

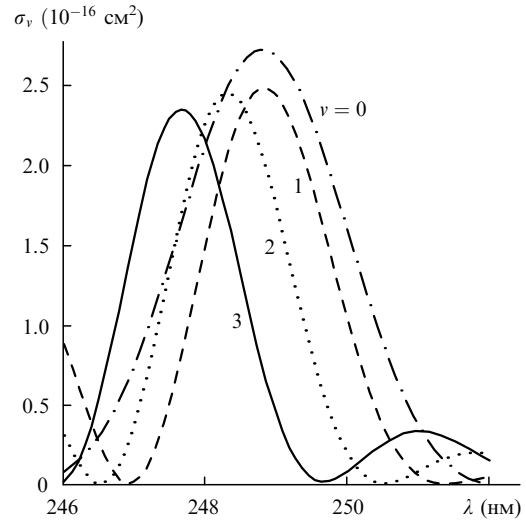


Рис.3. Сечения вынужденного излучения, вычисленные для переходов с различных колебательных уровней КгF (B).

Соотношение (6) имеет ясный физический смысл. В гипотетическом случае $\theta \simeq 0$ вклад в усиление света вносят незначительная часть эксимеров. Изменение их населенности θN не повлияет на полную населенность N . Следовательно, $R_f \simeq 1$ и $R_s \simeq 0$. В противоположном случае $\theta \simeq 1$ энергия в темновых состояниях не запасается, а значит, нет и быстрого восстановления g , поэтому $R_f \simeq 0$ и $R_s \simeq 1$.

В КгF-лазере вклад в вынужденное излучение света вносят сотни колебательно-вращательных уровней КгF (B) с энергиями, лежащими в интервале шириной порядка 10^3 см^{-1} . Для иллюстрации этого утверждения на рис.3 построены зависимости $\sigma_v(\lambda)$, соответствующие разным колебательным энергиям КгF (B): от $\varepsilon_{0,0} = 165$ см^{-1} до $\varepsilon_{3,0} = 1140$ см^{-1} (колебательный квант КгF (B) $\hbar\omega_B = 330$ см^{-1} [11]). Вращательные энергии состояний, дающих вклад в $\sigma_{\text{eff}}(\lambda)$, также лежат в широком интервале. Например, вращательный уровень КгF ($B, v = 0$) с $j = 63$ и населенностью 10% от максимальной при $T_r = 300$ К имеет $\varepsilon_{0,63} = 962$ см^{-1} .

Очевидно, что населенность большого числа оптически-активных колебательно-вращательных уровней КгF (B) должна быть равна примерно половине полной населенности энергетических уровней в кластере столкновительно перемешанных состояний КгF (B, C). Другими словами, должно выполняться приближенное равенство $\theta \simeq 0.5$. Если распределение эксимеров по нижним колебательным уровням аппроксимировать бальцовановской функцией с колебательной температурой [14] T_v , то для θ будет найдено более точное выражение:

$$\theta = \left[1 + \frac{\sinh(\hbar\omega_B/2T_v)}{\sinh(\hbar\omega_C/2T_v)} \exp \frac{T_{eB} - T_{eC}}{T_v} \right]^{-1}, \quad (7)$$

где $T_{eB} - T_{eC} \equiv \Delta T_e$ – разность минимумов потенциалов состояний B и C . В компьютерных моделях КгF-лазера [15,16] было принято положительное $\Delta T_e = 80$ см^{-1} из [17].

Предсказанное значение $R_f \simeq 0.5$, найденное с помощью равенств (6) и (7), значительно превышает экспериментальные R_f [1–4]. В принципе, одно экспериментальное значение ($R_f = 0.25$ или 0.10) можно объяснить тем, что в литературе ΔT_e дано неверно. Тогда из равенства

$$\Delta T_e = T_v \ln \frac{R_f}{1 - R_f}$$

можно найти новое отрицательное значение ΔT_e . Так, $\Delta T_e = -T_v \ln 3 \simeq -380 \text{ см}^{-1}$ при $R_f = 0.25$ и характерном значении $T_v = 500 \text{ К}$. Даже если согласиться с такой большой ошибкой общепринятого значения ΔT_e , трудно объяснить разброс R_f в широком интервале 0.10–0.25.

5. Излучательные переходы между состоянием $\text{KrF}(B)$ и ридберговским состоянием $\text{KrF}(E)$

Для объяснения экспериментальных значений R_f необходимо учесть излучательные переходы между состояниями B , C и более высокими ридберговскими состояниями. Для молекулы KrF должны существовать излучательные переходы двух типов [9]: $\text{KrF}(B) \rightarrow \text{KrF}(E^2\Sigma)$ и $\text{KrF}(C) \rightarrow \text{KrF}(F^2\Pi)$. Для упрощения анализа рассмотрим влияние этих переходов на R_f независимо друг от друга.

Изучим вначале роль широкополосного поглощения света, переводящего эксимеры KrF из состояния B на высокие ($v \geq 20$) колебательные уровни ридберговского состояния E . Для простоты будем предполагать, что расщепление этих уровней вследствие колебательной релаксации и диссоциации протекает с временами порядка τ_0 . Тогда из уравнений баланса населенностей $\text{KrF}(B)$, $\text{KrF}(C)$ и $\text{KrF}(E)$ получим

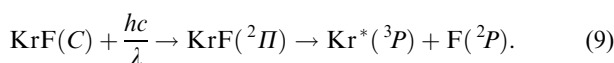
$$R_f = \frac{1}{2} \frac{\gamma_B - 3}{\gamma_B - 2}, \quad (8)$$

где $\gamma_B \equiv \sigma_{BX}/\sigma_{EB}$; σ_{BX} и σ_{EB} – сечения вынужденного излучения для переходов $\text{KrF}(B \rightarrow X)$ и $\text{KrF}(E \rightarrow B)$ соответственно. Формула (8) дает нам $R_f < 0.5$. Однако значение $R_f \simeq 0.25$ будет получено, если $\sigma_{BE} \simeq \sigma_{BX}/4$. При таком сильном поглощении света на переходе $B \rightarrow E$, лазерная генерация в KrF -лазере была бы, по-видимому, невозможной. По нашему мнению, можно считать, что $\gamma_B \geq 10$. В этом случае отклонением R_f от 0.5 можно пренебречь. Если предположить, что расщепление уровней $\text{KrF}(E)$ является медленным, то получаем $R_f > 0.5$.

Таким образом, рассмотренное самопоглощение света состоянием B , несмотря на свою важность, не позволяет объяснить измеренные R_f . Единственный процесс, который еще не был учтен, – это переход $\text{KrF}(C \rightarrow F)$.

6. Излучательные переходы между состоянием $\text{KrF}(C)$ и ридберговским состоянием $\text{KrF}(F)$

Согласно [9] существует переход между состоянием C и ридберговским состоянием $\text{KrF}(F^2\Pi)$, коррелирующим с парой $\text{Kr}^*(^3P) - \text{F}(^2P)$:



Этот переход отвечает за провал в спектре коэффициента усиления света KrF -лазера на $\lambda = 248.91 \text{ нм}$. Согласно гауссовой модели, использованной при моделировании спектров в [18], коэффициент поглощения света зависит от λ (взятых в нанометрах) как

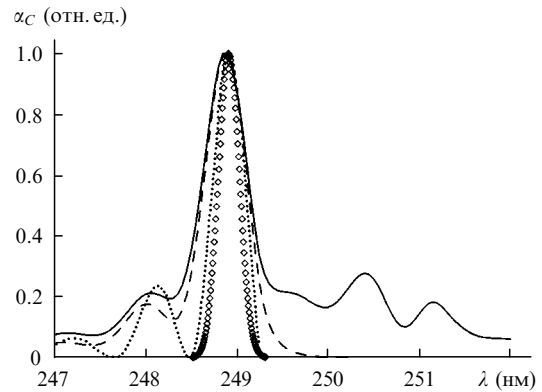


Рис.4. Спектр поглощения света на переходе $\text{KrF}^*(C, v = 0 - 4) \rightarrow \text{Kr}^* + \text{F}$ (сплошная кривая). Вклады основного колебательного уровня $\text{KrF}(C, v = 0)$ и нулевого вращательного уровня $\text{KrF}(C, v = 0, j = 0)$ показаны штриховой и пунктирной кривыми соответственно, точки – спектр поглощения $\alpha_C(\lambda)$, определяемый уравнением (10).

$$\alpha_C(\lambda) = 0.32g_0 \exp \left[-4 \ln 2 \left(\frac{\lambda - 248.91}{0.27} \right)^2 \right], \quad (10)$$

где g_0 – коэффициент усиления света с $\lambda_0 = 248.4 \text{ нм}$. Более сложную зависимость $\alpha_C(\lambda)$ можно получить, используя электронный потенциал разлетного ридберговского состояния из [18]

$$U = 80949 + 3 \cdot 10^5 \exp(-3.857r) + 2 \cdot 10^{15} \exp(-16.657r), \quad (11)$$

где U взято в обратных сантиметрах; r – межъядерное расстояние в ангстремах. Результаты расчета показаны на рис.4. В расчете учитывались переходы со 101 вращательного уровня пяти колебательных состояний $\text{KrF}(C)$. Вращательное распределение считалось больцмановским с газовой температурой T . Населенность колебательных состояний оценивалась с помощью формулы (3) при $\kappa = 0.3$.

Согласно проведенным вычислениям, спектральный профиль $\alpha_C(\lambda)$ сильно изменяется при изменении κ , если $\lambda \geq 250 \text{ нм}$. Однако в изучаемой нами области лазерного излучения $\text{KrF}(B \rightarrow X)$ плавная функция $\alpha_C(\lambda)$ слабо зависит от κ . В этой спектральной области поглощение света обусловлено переходами из колебательного состояния $\text{KrF}(C, v = 0)$. Учет большого числа вращательных уровней $\text{KrF}(C, v = 0)$ дает функцию $\alpha_C(\lambda)$, значительно более широкую, чем функция (10). Для нашего анализа, однако, важно, что сравнительно сильное поглощение света при $248 < \lambda < 249 \text{ нм}$ существует, если учесть всего один переход с нулевого вращательного уровня $\text{KrF}(C, v = 0)$.

Поглощение света конкурирует с усилением, которое характеризуется функцией

$$g(\lambda) = g_0 \exp \left[-4 \ln 2 \left(\frac{\lambda - 248.4}{2.3} \right)^2 \right]. \quad (12)$$

Роль перехода (9) в молекулярной кинетике зависит от его вклада в отношение γ коэффициента усиления света к суммарному коэффициенту поглощения:

$$\gamma = (\gamma_m^{-1} + \gamma_C^{-1})^{-1}, \quad \gamma_C \equiv \frac{\int g \rho d\lambda}{\int \alpha_C \rho d\lambda},$$

где γ_m – отношение коэффициента усиления света к коэффициенту широкополосного поглощения активной среды [15, 19]. Отношение γ_m определяется компонентами активной среды F_2 , F^- , Kr_2^+ , Kr_2F^* , Ar_2^+ , Ar^{**} и Kr^{**} . Согласно экспериментальным данным, для КгF-лазера значения γ лежат в диапазоне 10–30, где более высокие цифры относятся к лазерам с накачкой электрическим разрядом, а более низкие – к лазерам с накачкой электронным пучком [18, 20].

Как известно, поглощение света в лазерном усилителе приводит к насыщению мощности светового импульса ($\partial\rho/\partial x \simeq 0$). Поскольку при насыщении мощность импульса не изменяется при его распространении в активной среде, энергия оптически-активных молекул превращается не в световую энергию, а в энергию продуктов поглощения света.

Рассмотрим два противоположных случая. Вначале примем, что

$$\gamma_C \ll \gamma_m. \quad (13)$$

В этом случае поглощение в активной среде существует в основном благодаря переходу (9). При распространении насыщающего светового импульса число переходов $KrF(B) \rightarrow Kr + F(^2P)$ будет примерно равно числу переходов $KrF(C) \rightarrow Kr^*(^3P) + F(^2P)$. Следовательно, коэффициент быстрого восстановления света $R_f \simeq 0$, что близко к экспериментальному значению [3] $R_f = 0.10$.

В противоположном случае $\gamma_C \gg \gamma_m$ величина γ не зависит от поглощения (9), поэтому уменьшением населенности состояния C при распространении импульса света можно пренебречь. В этом случае $R_f \approx 0.5$.

К сожалению, имеющиеся в настоящее время данные не позволяют найти точное значение γ_C . Так, на рис.5 сравниваются γ_C , вычисленные двумя способами. В обоих случаях спектральная плотность фотонов насыщающего импульса аппроксимировалась гауссовой функцией (5) с $\lambda_0 = 248.5$ нм. В одном случае для вычисления γ_C ($\Delta\lambda$) использовалось равенство (10), в другом зависимость γ_C ($\Delta\lambda$) была найдена с помощью потенциала ридберговского состояния (11). Для $\Delta\lambda = 0.1$ нм, что отвечает $t_p = 1$ пс, эти два способа вычисления дали соответственно $\gamma_C = 916$ и 8.6.

По-видимому, реальное значение $\gamma_C \approx 30$, и для электроразрядных лазеров $\gamma_C \simeq \gamma_m$. Во-первых, при таком соотношении падение населенности ΔN_C состояния C будет равно примерно половине падения населенности

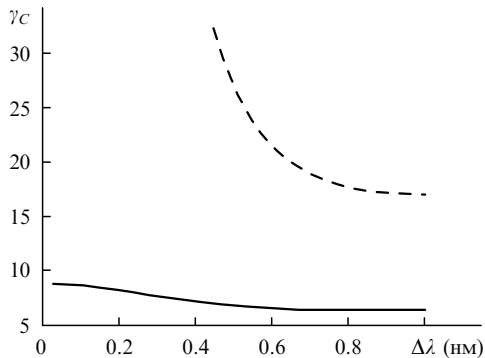


Рис.5. Параметр γ_C , вычисленный для функции $\alpha_C(\lambda)$, которая определяется формулой (10) (штриховая кривая) и сплошной кривой рис.4 (сплошная кривая), с использованием для импульса насыщающего света гауссова спектрального распределения (5) с $\lambda_0 = 248.5$ нм.

ΔN_B состояния B . Следовательно, для электроразрядных КгF-лазеров $R_f \approx 0.25$. Во-вторых, зависимость γ_m от состава активной среды, наряду с зависимостью γ_C от λ_0 и $\Delta\lambda$, позволяет объяснить изменение экспериментальных R_f в широком диапазоне 0.10–0.25. В-третьих, величина $\Delta N_C \times \Delta N_B^{-1}$ в КгF-лазере с накачкой электронным пучком должна быть значительно ниже единицы из-за более низких γ_m , поэтому в таком лазере $R_f \approx 0.5$. Последнее утверждение согласуется с недавним исследованием [9], объяснившим пикосекундную динамику спектра электронно-пучкового усилителя на КгF.

Таким образом, рассмотренное поглощение света молекулами КгF(C) позволяет объяснить все известные экспериментальные данные для R_f и предсказать новые эффекты. Отметим эффект, который должен наблюдаться, если насыщающий световой импульс имеет $\lambda_0 = 248.9$ нм. В этом случае $\gamma_C \ll 10$ при $\Delta\lambda \leq 1$ нм и выполняется неравенство (13). Следовательно, при распространении насыщающего импульса число излучаемых фотонов с длиной волны λ_0 будет примерно равно числу образованных эксимеров КгF(F). В принципе, вся населенность основного колебательного уровня КгF(C) может быть переведена в ридберговское состояние.

Возможность передачи значительной доли населенности верхнего лазерного уровня КгF($B \rightarrow X$)-лазера в ридберговские состояния интересна с точки зрения получения усиления света в области $\lambda \simeq 120$ нм. Действительно, благодаря низкой симметрии электронных состояний КгF все оптические переходы КгF($B \rightarrow X$), КгF($E \rightarrow B$) и КгF($E \rightarrow X$) разрешены (см. рис.1) и имеют сравнимые дипольные моменты [10]. К сожалению, в настоящее время отсутствуют экспериментальные подтверждения расчетов [10]. Однако опубликованных в 1977 году данных достаточно, чтобы оценить излучательные свойства эксимеров КгF в спектральной области 120 нм. Так, можно найти коэффициент антистоксова рассеяния света $\sigma_R \simeq 10^{-26}$ см⁴/Вт [21] для комбинационного перехода между состояниями B , E и X с $\lambda \simeq 120$ нм. Из-за высокой спектральной плотности индивидуальных электронно-колебательно-вращательных линий переходов КгF($E \rightarrow B$) и КгF($E \rightarrow X$) сечение σ_R не должно уменьшаться при уменьшении длительности импульса накачки до пикосекундной. Эта особенность позволяет надеяться на возможное экспериментальное обнаружение предсказанного коротковолнового излучения в лазерном усилителе коротких импульсов.

В заключение можно отметить, что излучательный переход из состояния КгF(C) в состояние КгF($F^2\Pi$) не приводит к полной потере энергии электронного возбуждения. Эксимеры КгF($F^2\Pi$) быстро распадаются на пары $Kr^*(^3P) + F(^2P)$. Из них в гарпунной реакции Kr^* с F_2 или в рекомбинационной реакции $Kr^*(^3P)$ и $F(^2P)$ образуются эксимеры КгF(B , C) на высоких колебательных уровнях [19]. За этими реакциями следует сравнительно медленная колебательная релаксация образованных молекул КгF(B , C), приводящая к заселению верхнего лазерного уровня.

7. Выводы

Таким образом, анализ быстрого восстановления коэффициента усиления света в КгF($B \rightarrow X$)-лазере с использованием новой теоретической концепции позволил объяснить наблюдавшуюся кинетику заселения верхнего

лазерного уровня. Ключевую роль играют два кинетических процесса. Первый процесс – перемешивание состояний B и C в столкновениях эксимеров с атомами буферного газа. Этот процесс выравнивает населенности состояний B и C , его характерное время определяется газокинетическими столкновениями. Второй процесс – оптический переход из состояния $\text{KrF}(C)$ в более высокое ридберговское состояние. С одной стороны, поглощение света молекулами $\text{KrF}(C)$, сопровождающее вынужденное излучение на переходе $\text{KrF}(B \rightarrow X)$, влияет на спектр усиления KrF -лазера. Резкий максимум поглощения на $\lambda = 248.9$ нм делает спектр усиления уже, а широкополосное поглощение в области $\lambda \simeq 248.4$ нм приводит к уменьшению отношения коэффициента усиления света к коэффициенту поглощения. С другой стороны, в электроразрядных KrF -лазерах фотопереход $\text{KrF}(C) \rightarrow \text{KrF}(F)$ переводит значительную часть эксимеров из состояния C в отталкивательное ридберговское состояние.

1. Szatmári S., Schäfer F.P. *Appl. Phys. B*, **33**, 219 (1984).
2. Szatmári S., Schäfer F.P. *J. Opt. Soc. Amer. B*, **4**, 1943 (1987).
3. Taylor A.J., Gibson R.B., Roberts J.P. *Appl. Phys. Letts*, **52**, 773 (1988).
4. Szatmári S. *Top. Appl. Phys.*, **70**, 129 (1992).
5. Datsyuk V.V. *J. Phys. Studies*, **4**, 37 (2000).
6. Datsyuk V.V., Izmailov I.A. *J. Phys. Studies*, **4**, 274 (2000).
7. Corcum P.B., Taylor R.S. *IEEE J. Quantum Electron.*, **18**, 1962 (1982).
8. Kannari F. *J. Appl. Phys.*, **67**, 3954 (1990).
9. Datsyuk V.V., Hooker C.J., Divall E.J., Hirst G.J., Ross I.N., Lister J.M.D., Osvay K. *J. Chem. Phys.*, **112**, 3766 (2000).
10. Hay P.J., Dunning T.H. Jr. *J. Chem. Phys.*, **66**, 1306 (1977).
11. Lo G., Setser D.W. *J. Chem. Phys.*, **100**, 5432 (1994).
12. Milonni P.W., Gibson R.B., Taylor A.J. *J. Opt. Soc. Amer. B*, **5**, 1360 (1988).
13. Kvaran A., Shaw M.J., Simons J.P. *Appl. Phys. B*, **46**, 95 (1988).
14. Дацок В.В., Измайлов И.А., Кочелап В.А. *УФН*, **168**, 439 (1998).
15. Kannari F., Obara M., Fujioka T. *J. Appl. Phys.*, **57**, 4309 (1985).
16. Lee Y.W., Endoh A. *Appl. Phys. B*, **52**, 245 (1991).
17. Julienne P.S., Krauss M. *Appl. Phys. Letts*, **35**, 55 (1979).
18. Shaw M.J., Divall E.J., Hirst G.J., Hooker C.J., Lister J.M.D., Ross I.N., Kvaran A., Osvay K. *J. Chem. Phys.*, **105**, 1815 (1996).
19. Рокни М., Джакоб Дж.Х. *Газовые лазеры* (М., Мир, 1986, гл.10).
20. Barr J.R.M., Everall N.J., Hooker C.J., Ross I.N., Shaw M.J., Toner W.T. *Optics Comms*, **66**, 127 (1988).
21. Datsyuk V.V. *Chem. Phys. Letts*, **329**, 477 (2000).