

## نقش پدیده گسست چندفوتونی در شکل‌دهی تپ‌های لیزری CO<sub>2</sub>

صالحه بهشتی‌پور<sup>۱،۲\*</sup>، جواد کریمی‌ثابت<sup>۳</sup>، رضا نشاطی<sup>۱</sup>، داود احمدپور<sup>۱</sup>

۱. پژوهشکده فوتونیک و فن‌آوری‌های کوانتومی، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، سازمان انرژی اتمی، صندوق پستی: ۱۴۳۹۵-۸۳۶، تهران - ایران

۲. گروه فیزیک، دانشکده علوم پایه، دانشگاه آزاد اسلامی، واحد تهران مرکزی، صندوق پستی: ۱۴۶۹۶-۶۹۱۹۱، تهران - ایران

۳. پژوهشکده چرخه سوخت هسته‌ای، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، سازمان انرژی اتمی ایران، صندوق پستی: ۱۳۶۵-۸۴۸۶، تهران - ایران

\*Email: sbeheshtipour@aeoi.org.ir

### مقاله‌ی پژوهشی

تاریخ دریافت مقاله: ۱۴۰۱/۶/۲ - تاریخ پذیرش مقاله: ۱۴۰۱/۹/۵

### چکیده

در این پژوهش، تغییرات زمانی تپ‌های لیزری CO<sub>2</sub> با فشار SF<sub>6</sub> با فشار ۱۰-۱۵۰ mbar که از اتفاقی حاوی گاز SF<sub>6</sub> عبور می‌کند، در شاریدگی‌های انرژی و فشارهای گازی مختلف بررسی شده است. نشان داده شده است که برای هر شاریدگی، فشار قطع معینی وجود دارد که در این فشار قطع، میخه تپ لیزری به طور کامل حذف می‌شود، در حالی که دنباله تپ که در برگیرنده کسر قابل توجهی از انرژی اولیه آن است، بر جامی ماند. شواهد تجربی برآمده از داده‌های بینابستنی FTIR، گسست چندفوتونی لیزری مولکول‌های SF<sub>6</sub> را پاسخگوی اصلی این رفتارها معرفی می‌نماید.

**کلیدواژه‌ها:** شکل‌دهی لیزر گازکربنیک، گسست چندفوتونی، مولکول SF<sub>6</sub>

## The role of multi-photon dissociation in TEA CO<sub>2</sub> lasers pulse shaping

S. Beheshtipour<sup>\*1,2</sup>, J. Karimisabet<sup>3</sup>, R. Neshati<sup>1</sup>, D. Ahadpour<sup>1</sup>

1. Photonic and Quantum Technologies Research School, Nuclear Science and Technology Research Institute, AEOI, P.O.Box: 14395-836, Tehran - Iran

2. Department of Physics, Central Tehran Branch, Islamic Azad University, P.O.Box: 14696-69191, Tehran - Iran

3. Nuclear Fuel Cycle Research School, Nuclear Science and Technology Research Institute, AEOI, P.O.Box: 11365-3486, Tehran - Iran

### Research Article

Received 24.8.2022, Accepted 26.11.2022

### Abstract

In this research, temporal variations in intense TEA CO<sub>2</sub> laser pulses passing through SF<sub>6</sub> gas-filled cells with a pressure of 10- 150 mbar have been characterized at different energy fluences and gas pressures. It has been shown that for every fluence there is a certain cut-off pressure at which the pulse spike is completely quenched. While the pulse tail escapes, saving appreciable fractions of its initial energy. Experimental evidence along with FTIR spectrometry data have clearly revealed incisive laser-induced multi-photon dissociation of SF<sub>6</sub> molecules in these conditions, pronounced as the main responsible for these behaviors.

**Keywords:** CO<sub>2</sub> laser pulse shaping, Multiphoton dissociation, SF<sub>6</sub>



بهنگاهان شمار فراوانی از فوتونهای فرودی را جذب نماید و با بالا رفتن از نردهای ترازهای ارتعاشی خود، به مرز گسیست برسد. با رسیدن مولکول به مرز گسیست، یکی از سست ترین پیوندهای آن گسیسته می‌شود و مولکول دچار دگرگونی در ساختار شیمیایی خود خواهد گردید [۱۴]. از آن‌جا که فرایند گسیست چندفوتوئی منجر به تغییرات شیمیایی زیادی در ساختار مولکول جاذب، به همراه مصرف قابل توجهی از انرژی فرودی می‌شود (دها فوتون IR به ازای هر مولکول)، انتظار می‌رود اثرات قابل ملاحظه‌ای روی ساختار تپ عبوری داشته باشد. آستانه شاریدگی تابش فرودی برای گسیست چندفوتوئی IR از مولکول‌های چنداتمی با تپهای لیزری CO<sub>2</sub> در حدود ۲-۱۰ J/cm<sup>۳</sup> برآورد شده است [۱۵] که در بیشتر آزمایش‌های شکل دهی تپهای شدید لیزری CO<sub>2</sub> در عبور از مولکول‌های SF<sub>۶</sub> فشار بالا نیز به کار رفته است.

با بررسی دقیق‌تر گزارش‌های دردست، به نظر می‌رسد که در بیش‌تر پژوهش‌های انجام شده یا تنها به دنبال برهم‌کنش‌های انجام یافته با تپ فرودی بوده‌اند و کاری با شکل تپهای عبوری لیزری نداشته‌اند، یا بر روی تغییر شکل تپهای عبوری لیزری متمرکز بوده‌اند و چندان پیگیر برهم‌کنش‌های احتمالی تپ فرودی با مولکول‌ها نبوده‌اند. برای نمونه، در میان گزارش‌های پرشماری که از گسیست چندفوتوئی مولکول‌های SF<sub>۶</sub> به کمک تپهای پرتون و کانونی شده لیزرهای CO<sub>2</sub> منتشر شده‌اند، به سختی می‌توان مواردی یافت که همزمان شکل تپهای عبوری نیز بررسی شده باشد. با این حال جالب است که در پژوهش‌های شکل دهی تپهای لیزر CO<sub>2</sub>، هیچ تلاشی از سوی پژوهشگران به منظور بررسی نقش فرایند گسیست چندفوتوئی به چشم نمی‌خورد. در این پژوهش، شواهدی تجربی ارائه می‌گردد که به روشنی نقش کلیدی فرایند گسیست چندفوتوئی IR لیزری در مولکول‌های SF<sub>6</sub> را در تغییر شکل تپهای لیزری CO<sub>2</sub> آشکار می‌سازد.

## ۲. روش آزمایش

چیدمان تجربی به کار رفته به همراه نمایی از آن، در شکل‌های ۱ و ۲ نشان داده شده است.

## ۱. مقدمه

بررسی برهم‌کنش مولکول SF<sub>6</sub> با تپهای لیزری CO<sub>2</sub> یکی از فراوان‌ترین موارد پژوهش‌های تجربی و نظری در زمینه‌های گوناگونی هم‌چون بینابسننجی لیزری، شیمی لیزری، اپتیک غیرخطی، لیدار و مانند آن‌ها است.

در شرایط کاری معمولی، تپهای گسیلی این لیزرها در برگیرنده یک میخه<sup>۱</sup> یا لبه تیز و پیشو با پهنه‌ای زمانی ۸۰-۱۲۰ ns و نیز یک دنباله<sup>۲</sup> به درازای ۵-۲۵ μs است. از سوی دیگر، رفتار جذب غیرخطی گازهای جاذب اشباع‌پذیر، به ویژه SF<sub>6</sub> در برابر تپهای لیزرهای CO<sub>2</sub> و اثرات بعدی آن روی مشخصات زمانی و توانی تپهای عبوری به‌گونه مفصلی طی سال‌های ۱۹۷۰-۲۰۰۰ میلادی مورد بررسی قرار گرفته‌اند.

در روند آزمایش‌هایی که در شرایط گوناگونی از فشار گاز، شاریدگی فرودی، طول موج لیزری، پهنه‌ای زمانی تپ، گازهای کمکی و مانند آن‌ها انجام گرفته‌اند، پدیده‌های گوناگونی هم‌چون افزایش یا کاهش جذب و استهله به طول موج [۷-۱۱]، جابه‌جایی سرخ در جذب [۶-۹]، کشیدگی میخه تپ [۶]، تأخیر در تپ عبوری [۲، ۶] و افت شدید دامنه میخه تپ نسبت به دنباله آن [۱۰، ۱۱] دیده شده‌اند و برای توصیف آن‌ها از دو مدل نظری کوانتومی جاذب اشباع‌پذیر چهارترازی [۱۲] و تشت ارتعاشی<sup>۳</sup> [۱۳، ۵] سود جسته شده است.

به طور کلی در این بررسی‌ها، فشارهای گاز از چند میلی‌بار تا صدها میلی‌بار، دیرش زمانی تپهای لیزری از چند پیکوثانیه تا چند میکروثانیه و شاریدگی<sup>۴</sup>‌ها از چند صدم تا چندین ژول بر سانتی‌متر مربع تغییر داده شده‌اند.

گذشته از این، جذب و گسیست چندفوتوئی مولکول‌های چند اتمی، تحت تابش تپهای شدید لیزری (به ویژه مولکول SF<sub>6</sub> و لیزر CO<sub>2</sub>)، اثرات غیرخطی شناخته شده دیگری هستند که در زمینه‌های شیمی لیزری و لیزری مولکول‌ها از اهمیت بسزایی برخوردارند.

آزمایش‌ها نشان داده است که هنگام تابش‌دهی مولکول‌های چنداتمی با فوتونهای تک-بسامد و همدوس هم‌خوان با نخستین گذار ارتعاشی آن‌ها، اگر شاریدگی فرودی از یک اندازه آستانه‌ای از رده چند  $J \cdot cm^{-2}$  بالاتر باشد، مولکول می‌تواند در روند فرایندی که جذب چندفوتوئی<sup>۵</sup> نامیده می‌شود،

1. Spike
2. Tail
3. Vibrational Bath
4. Fluency
5. Multiphoton Absorption



به قطر  $1/7$  cm استفاده شده که انرژی  $J_{1/4}$  برای خط P(۲۰) ۱۰ فراهم می‌سازد. همچنین آهنگ تکرار تپ لیزر در بازه  $10 - 100$  Hz قابل تعبیب است.

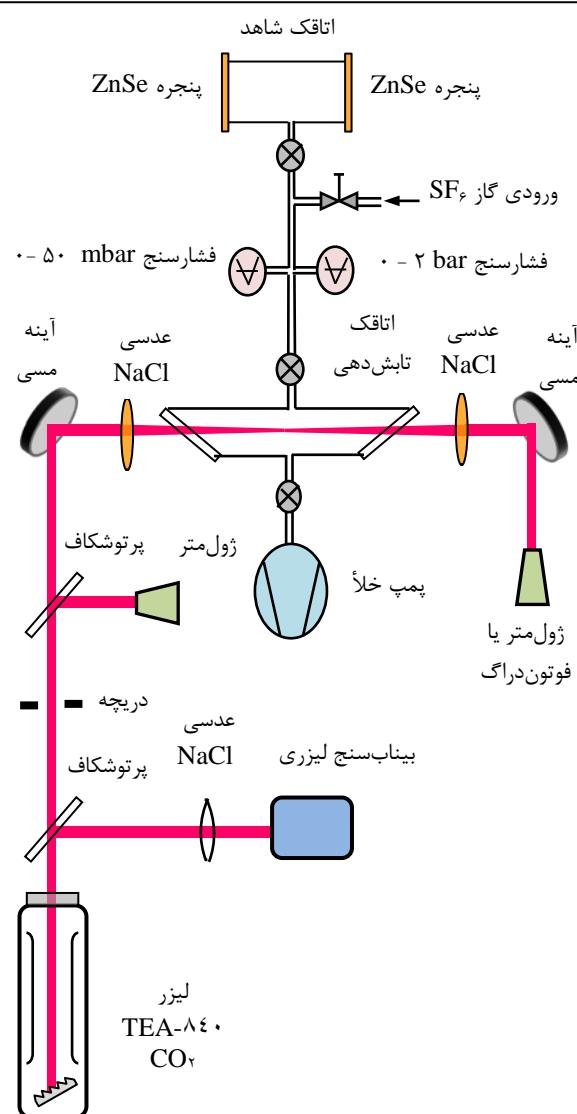
برای تنظیم لیزر گازکربنیک روی خطهای لیزری دلخواه، از یک بیناب‌سنج لیزری مدل (Opt. Eng. Inc., ۱۶-A) استفاده است.

برای آن که بتوان اثر فرایند گسیست چندفوتونی را به صورت خالص و بدون مزاحمت‌های ناشی از پدیده‌های دیگری مانند گرمایش گاز یا برانگیختگی‌های ارتعاشی بررسی نمود، بهتر است کاری کرد تا پرتوهای فرویدی از همان آغاز ورود به اتفاق تابش‌دهی، دارای شاریدگی بالاتر از شاریدگی آستانه گسیست چندفوتونی باشد. همچنین طول اتفاق نباید چندان زیاد باشد که شاریدگی تپ‌ها در بخش پایانی مسیر تابش‌دهی، به دلیل حذف در مسیر، به زیر آستانه افت نماید.

از آن جا که شاریدگی اولیه تپهای گسیلی لیزر در شرایط عادی کمتر از  $J/cm^2$  ۱ و بسیار پایین‌تر از آستانه گستالت چندفوتونی است (این شاریدگی با انرژی و قطر باریکه لیزر قابل محاسبه است)، روشن است که برای برآورده شدن شرط بالا، ناگزیر باید از اتاقکی بهره گرفت که دارای پنجره بروستر باشد و بتوان عدسی کانونی‌کننده را دورتر از آن‌ها قرار داد. به این ترتیب، می‌توان کاری کرد که ابعاد پرتو کانونی شده هنگام برخورد به پنجره و ورود به اتاقک به اندازه‌ای کم شده باشد که شاریدگی آن بالاتر از شاریدگی آستانه گستالت چندفوتونی مملکوا ها،  $SE$  باشد.

بنابراین، اتاقک تابش دهی از یک لوله پیرکس به در ازای  $9.5 \text{ cm}$  و قطر داخلی  $1.6 \text{ cm}$  (حجم کل  $V_t = 19.1 \text{ cm}^3$ ) ساخته شده است که دو سمت آن با پنجره های بروستر NaCl بسته شده اند تا تلفات بازتابی را کمینه و شاریدگی روی پنجره ورودی را با تابش مورب کاهش دهند. کانونی سازی تپ ها در مرکز اتاقک با دو عدسی ZnSe با لایه نشانی پاد بازتاب به فاصله  $10 \text{ cm}$  انجام گرفته که به گونه مقارن در فاصله  $5.25 \text{ cm}$  از پنجره های اتاقک قرار گرفته اند. همچنین، اتاقک و عدسی های کانونی کننده به گونه ای طراحی یافته اند که شاریدگی سطحی تپ های فرودی در پنجره ورودی اتاقک، بالاتر از آستانه شاریدگی برای فرایند گسست چند فوتونی IR مولکول های  $\text{SF}_6$  باشد.<sup>۱۰</sup>

سیستم جابه‌جایی گاز نیز به گونه‌ای طراحی یافته که قادر است تحت شرایط جریان گاز بسته یا باز عمل نماید. دو فناوری سنج مکانیکی mbar<sup>-0.5</sup> و bar<sup>-0.2</sup> به طور همزمان



### شکل ۱. نمایی از چیدمان به کار رفته.



شکل ۲. تصویر چیدمان به کار رفته.

لیزر به کار رفته در این آزمایش، دارای تپهای قطبیده خطی با انرژی در حدود  $J = 4$  در خطوط با بالاترین بهره در شاخه‌های  $P$  و  $R$  از نوارهای  $\mu\text{m}$   $10.4 \pm 0.4$  است که الگویی مستطیلی به ابعاد  $3.2 \times 2.2 \text{ cm}^2$  با آمیزه گازی  $\text{CO}_2 : \text{N}_2 : \text{He} \equiv 1:2:5$  دارد.

انرژی کل تپ‌های فرویدی  $E_{in}$  به کل حجم تابش‌دهی شده،  $V_d$  تعريف می‌شود:

$$\varphi_V = \frac{E_{in}}{V_d} \quad (1)$$

با بررسی شکل تپ‌های عبوری، روشن شد که به گونه‌ای دور از انتظار، میخه تپ‌ها دچار افت سیار شدیدتری نسبت به دنباله آن‌ها می‌شوند، به گونه‌ای که با بیشتر شدن فشار گاز، ارتفاع میخه تا اندازه برابر با دنباله افت می‌نماید و سرانجام کاملاً حذف می‌شود و تنها دنباله آن‌ها در تپ‌های عبوری بر جا می‌ماند.

شکل ۳ برخی از شکل تپ‌های دریافتی در فشارهای گوناگون را به همراه شکل تپ فرویدی (شکل الف، بدون تزربیق گاز) نشان می‌دهد.

در شکل‌های تپ عبوری به دست آمده برای همه شاریدگی‌های حجمی، همواره یک افت چشمگیر در دامنه میخه نسبت به دامنه دنباله آن دیده شد. این نابرابری در اندازه جذب میخه و دنباله، به گونه قابل ملاحظه‌ای با افزایش فشار، تقویت می‌گردد. در فشاری نزدیک به فشار  $40 \text{ mbar}$ ، دامنه میخه و دنباله، یکسان می‌شود (شکل ج). در این فشارهای، که فشار موثر<sup>۱</sup>  $P_{eff}$  نامیده می‌شود، انرژی میخه به ۵٪ اندازه اولیه‌اش کاهش می‌یابد. با افزایش فشار گاز به بالاتر از فشار مؤثر، میخه تپ با آهنگ کمتری کاهش می‌یابد و سرانجام در فشارهای معینی ( $50 \text{ mbar}$ ) که آن را فشار قطع<sup>۲</sup>،  $P_{CutOff}$ ، نامیده‌ایم، به ناپدید شدن کامل میخه تپ می‌انجامد (شکل د).

با بررسی حجم تابش‌دهی درون اتفاق و تاریک کردن فضای آزمایشگاه، هم‌زمان با هر تپ لیزری، یک درخشندگی هاله‌ای در آن دیده می‌شد که شکل فضایی آن، دقیقاً منطبق بر حجم دو مخروطی تابش‌دهی بود. همچنین، شدت این هاله در دخshan در نیمه ورودی و لکه کانونی، بیشتر و برجسته‌تر از جاهای دیگر بود. پیش از این، آزمایشگران دیگری نیز پدیده لومینسانس مری و تشکیل نور آبی کمرنگ در چنین شرایطی را گزارش کرده‌اند و آن را به برهمنکنش‌های بازترکبی ثانوی فرایند گسست چندفوتوئی IR مولکول‌های چنداتمی مانند  $\text{SF}_6$  نسبت داده‌اند [۱۶، ۱۷].

برای اندازه‌گیری فشار مستقیم با دقت‌های مناسب در مقیاس فشارهای مختلف به کار رفته است. فشار درون اتفاق‌ها با گام‌های  $10 \text{ mbar}$  تغییر داده می‌شد. در هر گام از فشار درون اتفاق، تنها اجازه ورود یک تپ به درون اتفاق داده می‌شد تا با تکرار تابش تپ‌های لیزری، مولکول‌های گاز بیشتر شکسته نشود و فشار درون اتفاق را تغییر دهد. همچنین در هر گام از فشار، چند تپ عبوری ثبت می‌شدند، تا نتایج به دست آمده از روی آن‌ها، میانگین‌گیری شود.

برای نمایش تغییرات شیمیایی و شاهد تجربی فرایند گسست چندفوتوئی در گاز  $\text{SF}_6$  تابش‌دهی شده، از اتفاق دیگری به عنوان اتفاق نمونه‌برداری برای بینابسانجی FTIR (BRUKER,TENSOR ۲۷) استفاده شده است. این اتفاق، لوله‌ای از جنس پیرکس به طول  $2 \text{ cm}$  و قطر داخلی  $1.6 \text{ cm}$  با پنجره‌های ZnSe است که به طور عمودی در دو انتهای آن نصب شده‌اند. انرژی و شکل زمانی تپ‌های ورودی و عبوری با انرژی سنج (Coherent-LM-P10) و آشکارساز فوتون درآگ (ORIEL, ۷۴۵۵) که به گونه‌ای متناوب در نقاط مناسب گذاشته می‌شد، اندازه‌گیری شده‌اند. برای نمایش رد زمانی  $250 \text{ MHz}$  تپ‌های آشکار شده، از یک اسیلوسکوپ دیجیتالی استفاده شده است. همه آزمایش‌ها با آهنگ تکرار تپ  $1 \text{ Hz}$  انجام یافته است. در این آزمایش، شکل تپ عبوری برای تپ‌های کانونی شده خط  $(10 \text{ P}(20 \mu\text{m}) - 10 \text{ P}(5 \mu\text{m}))$  لیزر با انرژی  $J = 1/4 \text{ J}$  که از میان اتفاق پرشده از مولکول‌های  $\text{SF}_6$  در گستره فشار  $150 - 10 \text{ mbar}$  عبور می‌کنند، بررسی شد.

### ۳. نتایج و بحث

در ابتدا گاز  $\text{SF}_6$  با خلوص ۹۹.۹۹٪ با تپ‌های لیزری CO<sub>2</sub> روی خط  $(10 \text{ P}(20 \text{ mbar}) - 10 \text{ P}(5 \text{ mbar}))$  با انرژی‌های مختلف در گستره فشاری فشار از گاز، تپ لیزری در مسیر خود، جذبی قوی خواهد داشت، از این‌رو روشن است که انرژی تپ‌های فرویدی به گونه‌ای پیوسته و تا اندازه‌ای یکنواخت در حجم تابش‌دهی جاروب شده در سرتاسر مسیر عبور تپ‌ها از میان گاز جاذب، توزیع و جذب می‌شود. از همین‌رو، بهتر آن دیده شد تا برای مشخصه‌یابی شرایط تابش‌دهی در کانون اتفاق یا در هر نقطه دیگری در حجم تابش‌دهی، از کمیت دیگری با نام چگالی حجمی انرژی یا شاریدگی حجمی  $\varphi_V$  بهره گرفته شود که به صورت نسبت

1. Effective Pressure

2. Cut-Off Pressure

Journal of Nuclear Science and Technology

Vol. 44 (1), Serial Number 106, 2024, P 121-129

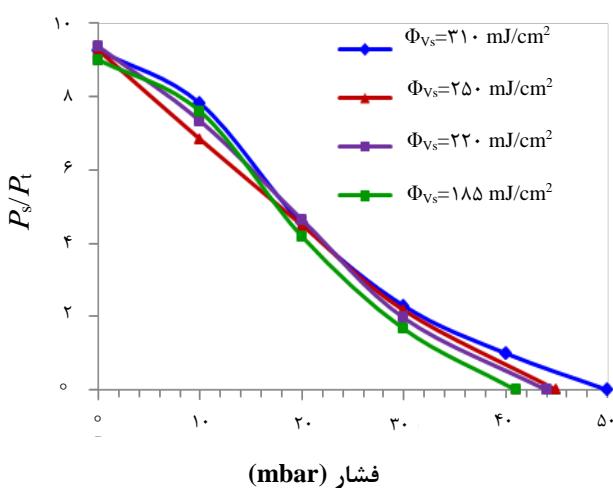


SF<sub>6</sub> با تپ‌های لیزری CO<sub>2</sub> برای شکل‌دهی تپ‌ها، بهره‌ی فراوانی گرفته شده و مدل‌های نظری چندی نیز برای تفسیر نتایج به دست آمده گسترش داده شده‌اند. تا آن‌جا که به رفتار دیده شده در این آزمایش‌ها مربوط می‌شود، نتایج تقریباً مشابهی با شرایط کم و بیش شبیه این آزمایش‌ها، پیش از این گزارش شده‌اند. برای نمونه، تضعیف بیش از اندازه و حذف میخه تپ‌های عبوری با تابش‌دهی تشیدیدی گاز SF<sub>6</sub> تنها در شرایطی دیده شده بود که در اتاقک تابش‌دهی افرون بر گاز SF<sub>6</sub> از گازهای کمکی دیگری همچون Ar و He نیز بهره گرفته شده بود [۱۸، ۴].

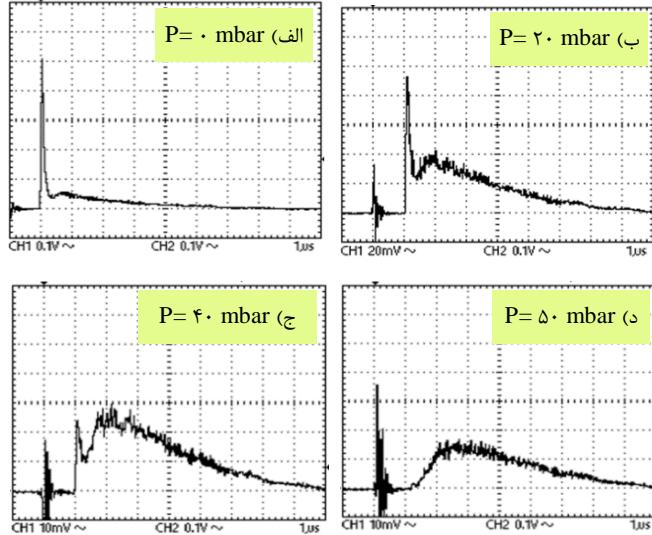
چنین پدیده‌ای بدون بهره‌گیری از گازهای کمکی نیز، تنها در تابش‌دهی‌های غیرتشیدیدی دیده شده بود [۵، ۱۱]. در واقع، این نخستین باری است که این تغییر شکل در تپ‌های عبوری، با تابش‌دهی تشیدیدی گاز SF<sub>6</sub> و بدون بهره‌گیری از هیچ گونه گاز کمکی دیده شده است.

همان‌گونه که در مقدمه گفته شد، در این دسته از آزمایش‌های گزارش شده، برای تفسیر رفتارهای گفته شده از دو مدل نظری کوانتومی جاذب اشباع‌پذیر چهارترازی و تشت ارتعاشی سود جسته شده است.

بیشتر رفتار جاذب‌های اشباع‌پذیر در برابر تپ‌های لیزری CO<sub>2</sub> را می‌توان با مدل چهارترازی توصیف نمود که در آن، دو تراز، مربوط به ترازهای غیرتبهگن در حالت تشیدید با گذار لیزری از دو شاخه ارتعاشی متفاوت است و دو تراز دیگر، در برگیرنده بقیه ترازهای چرخشی غیرتشیدیدی در آن دو شاخه ارتعاشی می‌باشند.



شکل ۴. تغییرات  $P_s/P_t$  در فشارهای گازی و شاریدگی‌های حجمی مختلف برای خط لیزری (۲۰) P<sub>t</sub>. (مکان قطع نمودار با محور X، فشار قطع هر شاریدگی حجمی را نشان می‌دهد).



شکل ۳. شکل تپ‌های عبوری در فشارهای گوناگون گازی برای خط (۲۰) P<sub>t</sub> با شاریدگی  $\Phi_{V_s} = 330 \text{ J/cm}^2$  و  $\Phi_{V_t} = 610 \text{ J/cm}^2$ . فشار درون اتاقک به ترتیب: (الف) ۰، (ب) ۲۰ mbar، (ج) ۴۰ mbar، (د) ۵۰ mbar.

شکل تپ‌های اولیه لیزری، که با تخلیه کامل اتاقک به دست آمداند، شامل یک میخه با پهنهای زمانی ۹۰ ns نسبت توان بیشینه دنباله‌ای به طول ۵  $\mu\text{s}$  دارد (شکل ۳ الف). نسبت توان بیشینه میخه تپ  $P_s$  به دنباله  $P_t$  آن، حدود ۱۰ است. همچنین، نسبت سهمهای انرژی وابسته به بخش‌های میخه،  $E_s$  و دنباله این تپ‌ها،  $E_t$ ، که با اندازه‌گیری مساحت نسبی زیر هر بخش به دست می‌آید، از  $۰/۴$ ، از  $۰/۰$  فراتر نمی‌رود. بر پایه این گفته‌ها، گاهی لازم است شاریدگی حجمی را به صورت جداگانه برای میخه،  $\Phi_{V_s}$  و دنباله،  $\Phi_{V_t}$  تعریف نمود:

$$\phi_{V_s} = \frac{E_s}{V_d}, \quad \phi_{V_t} = \frac{E_t}{V_d} \quad (2)$$

تغییرات نسبت  $P_s/P_t$  برای خط (۲۰) P<sub>t</sub> بر حسب فشار گاز برای شاریدگی‌های حجمی گوناگون از میخه، در شکل ۴ نشان داده شده است.

همان‌گونه که دیده می‌شود، در شاریدگی‌های گوناگون با افزایش فشار، نسبت  $P_s/P_t$  کاهش می‌یابد تا این که در فشارهای قطع، میخه تپ لیزری کاملاً حذف می‌شود. مکان‌های تقطع با محور X، فشار قطع مربوط به هر شاریدگی حجمی را نشان می‌دهد، به گونه‌ای که بالاترین فشار قطع، بیشترین شاریدگی حجمی را نشان می‌دهد.

همان‌گونه که گفته شد، تاکنون از تابش‌دهی تشیدیدی گاز



لیزرهای CO<sub>2</sub> را می‌توان با به کارگیری مدل‌های گفته شده، توصیف نمود [۵].

این مدل‌ها می‌توانند با در نظر گرفتن ترازهای دیگری از مدهای ارتعاشی دیگر، بسیاری از رفتارهای مولکول‌های جاذب اشباع‌پذیر را در برخورد با تپهای لیزری توجیه نمایند. با این حال، تا آن‌جا که به رفتاری مانند افت شدید میخه تپ لیزری در مقایسه با دنباله آن بازمی‌گردد، توجیه بنیادی این مدل‌ها، همان تفسیر آشنای پدیده اشباع جذب در تراز اولیه جاذب در پی جذب میخه تپ لیزری و شفاف شدن آن برای دنباله را دربرمی‌گیرد.

از سوی دیگر، آستانه شاریدگی تابش فروودی برای گسست چندفوتوئی IR برای بسیاری از مولکول‌های چنداتومی مانند SF<sub>6</sub> با تپهای لیزری CO<sub>2</sub> در حدود ۲ J/cm<sup>2</sup> برآورد شده است [۲۰]. این در حالی است که داده‌های آزمایشی بیشتر این گزارش‌ها نشان از آن دارند که شاریدگی‌های به کار گرفته شده در آن‌ها کاملاً بالاتر از این آستانه بوده‌اند و به همین دلیل می‌توان دریافت که قطعاً پدیده گسست چندفوتوئی در آن‌ها روی داده است. با این حال جالب است که هیچ تلاشی از سوی پژوهشگران برای بررسی نقش این فرایند و اثرات آن روی شکل تپهای لیزر CO<sub>2</sub> مشاهده نشده است.

یافته‌های ما نشان می‌دهند که فرایند گسست چندفوتوئی IR مولکول‌ها می‌تواند بهترین پاسخگوی چنین رفتارهایی در نظر گرفته شود.

### ۱۰.۳ بررسی نقش گسست چندفوتوئی

#### ۱۰.۳.۱ تابش‌دهی دراز مدت اتفاق درسته

پس از رساندن اتفاق تابش‌دهی به فشار قطع، اتفاق تابش‌دهی به صورت درسته (نبود شارش گاز) برای زمان‌های طولانی تابش‌دهی می‌گردید. دیده می‌شد که شکل تپهای عبوری با گذشت زمان ثابت نمی‌ماند، به گونه‌ای که رفته رفته میخه تپ‌ها بزرگ و بزرگ‌تر می‌شوند و سرانجام، پس از چند صد تپ، شکل تپهای عبوری درست مانند شکل تپهای فروودی می‌شد. همگام با این تغییرات، شدت تابش هاله‌ای مریبی درون اتفاق نیز کم کم ضعیفتر و سپس، کاملاً ناپدید می‌شد.

برای آن که روشن شود آیا این رفتار مربوط به گرم شدن گاز درون اتفاق است یا نه، و این که آیا ریشه در پدیده‌های کوانتومی درون مولکولی دارد که می‌توانند برگشت‌ناپذیر باشند، اتفاق به مدت دو ساعت در حالت استراحت قرار داده شد. سپس، باز دیگر تابش‌دهی آن از سر گرفته شد و با این حال، دیده شد که هنوز هم نه تابش هاله‌ای درون اتفاق وجود دارد و نه حذف میخه تپهای فروودی روی می‌دهد. به زبان دیگر، پس از گذشت دو ساعت خنکسازی و بازگشت گاز به شرایط

در مدل جاذب اشباع‌پذیر چهار ترازی، فرض می‌شود که اضافه بر جذب عادی در مدل فعال اولیه که در تشديد با تابش فروودی است، جذب دیگری در یک تراز برانگیخته از مدل دیگر نیز رخ می‌دهد که با اولین تراز برانگیخته از مدل اولیه، از طریق واهلش‌های ارتعاشی- ارتعاشی برخوردی (V-V) یا انتقال‌های تابشی جفت شده است. توزیع این مولکول‌ها در میان این ترازها در هر زمان، شدیداً وابسته به شاریدگی فروودی، فشار گاز و فروافت‌های تابشی یا غیرتابشی میان همه ترازهای درگیر است. به گونه‌ای که، درگیر شدن گروه‌های دیگری از ترازهای ارتعاشی با ویژگی‌های بینابی گوناگون در فرایند جذب پرتوهای فروودی، می‌تواند ویژگی‌های جذبی گوناگونی را برای مولکول‌های گاز به همراه داشته باشد. با استفاده از مدل کامل‌تر هفت ترازی، نتایج بهتری نیز به دست آمده است [۱۹].

مدل چهار ترازی، در توصیف برخی پدیده‌ها ناتوان است. برای نمونه، پهن‌شدنگی تپ لیزری CO<sub>2</sub> در خط ۱۰P(۲۰) و در فشارهای بالای گازی قابل توجیه نیست که این ناسازگاری در طول موج‌های بلند بیشتر هم می‌شود. همچنین برخی از پدیده‌هایی که در برخی از خط‌های لیزر CO<sub>2</sub> دیده می‌شود، به کمک این مدل قابل توصیف نیست [۵]. بنابراین پژوهشگران در پی یافتن مدلی جامع برای توجیه رفتار عبور همه خط‌های لیزر CO<sub>2</sub> از میان گاز SF<sub>6</sub> در همه فشارها شدن و سرانجام مدل جامع تنشت ارتعاشی را رائه نمودند. مدل تنشت ارتعاشی نیز، همه ترازهای ارتعاشی و چرخشی را همچون تنشتی از ترازها در نظر می‌گیرد که با یک تک‌دمای ارتعاشی و نیز یک تک‌دمای چرخشی مشخص می‌شود. هنگامی که یک تپ لیزری تشیدی در چنین مولکول‌هایی فروود می‌آید، انرژی تابشی جذب شده، به تندي در سراسر این تنشت ارتعاشی (مدهای ارتعاشی مولکول) توزیع می‌شود. این مدها، به تندي انرژی خود را میان یکدیگر پخش می‌کنند و در زمانی کوتاه در مقایسه با پهنهای زمانی تپ لیزری، به حالت تعادل می‌رسند. در نتیجه، توزیع انبوهی آن‌ها هم‌خوان با قانون توزیع بولتزمن خواهد بود. به این ترتیب، نمودار جذب بر حسب فرکانس برای مولکول، مانند SF<sub>6</sub>، می‌تواند تغییر یابد و قله‌های آن به فرکانس‌های کمتر (با دمای ارتعاشی بیشتر) جابه‌جا شوند. در نتیجه در یک بسامد مشخص، وقتی SF<sub>6</sub> گرم می‌شود، ضریب جذب می‌تواند افزایش یا کاهش یابد. نتایج به دست آمده به کمک این مدل، با یافته‌های تجربی سازگاری نسبتاً بالایی دارد. این مدل، بیشتر در فشارهای بالای گازی به کار برده می‌شود هر چند که در فشارهای پایین نیز موفق بوده است [۱۳]. روی هم‌رفته، پژوهشگران ادعا نموده‌اند که رفتارهای جذب غیرخطی گوناگون در گازهای جاذب اشباع‌پذیر، به ویژه SF<sub>6</sub> در برابر تپهای



همان‌گونه که از این شکل دیده می‌شود، همان‌چنان که از یک سو و با افزایش شمار تپ‌های لیزری (m)، قله‌های جذب وابسته به فرآورده‌های گسست که در بردارنده مولکول‌های  $\text{SF}_4$  و  $\text{SF}_6$  هستند، در بازه بینانی  $790\text{--}850\text{ cm}^{-1}$  بزرگ و بزرگ‌تر می‌شوند، از سوی دیگر، بلندی قله‌های جذب وابسته به مولکول‌های  $\text{SF}_6$  در بسامد  $1\text{--}948\text{ cm}^{-1}$  از اندازه بیشینه آغازین خود، رفته رفته کاهش می‌یابد. این بیناب‌ها، که افت دامنه قله جذب را همگام با تعداد تپ‌های فروودی نشان می‌دهند، به‌گونه‌ای قطعی و غیرقابل انکار، همان‌گونه که در محاسبات مربوط به طراحی اتفاق تابش‌دهی نیز پیش‌بینی شده بود، انجام فرایند گسست چند فوتونی مولکول‌های  $\text{SF}_6$  را ثابت می‌نمایند. داده‌های اندازه‌گیری و محاسبه شده مرتبط با گازهای تابش‌دهی شده با خط  $(10\text{P}(20))$  با شاریدگی‌های حجمی گوناگون در جدول ۱ خلاصه شده است.

کمیت  $n_s / N_d$  نسبت ( $n_s = E_s / h\nu$ ) تعداد فوتون‌ها در میخه تپ، به تعداد مولکول‌ها در حجم تابش‌دهی شده،  $N_d$  را تعیین می‌نماید. باید یادآور شد که تعداد متوسط فوتون‌هایی که برای گسست همه مولکول‌ها، درون حجم تابش‌دهی مصرف می‌شوند، به صورت زیر بدست می‌آید:

$$\text{همان‌گونه که می‌دانیم، معادله حالت گاز کامل به صورت رابطه زیر داده می‌شود:}$$

$$PV = NKT \quad (3)$$

که  $P$  و  $T$  به ترتیب فشار، حجم و دمای گاز می‌باشد. هم‌چنین  $N$  تعداد مولکول‌های موجود در گاز و  $K$  ثابت بولتزمن است.

جدول ۱. داده‌های اندازه‌گیری و محاسبه شده برای گازهای تابش‌دهی شده با خط  $(10\text{P}(20))$  در شاریدگی‌های گوناگون

$\Phi_{Vs}$ ( $\text{mJ/cm}^2$ )	$P_{\text{eff}}$ (mbar)	$E_t$ (mJ)	$E_s$ (mJ)	$n_s/N_d$
۳۳۰	۴۰	۱۰۰۰	۵۳۵	۱۸,۵
۳۰۰	۳۸	۸۹۰	۴۸۰	۱۷,۴
۲۶۰	۳۷	۷۷۵	۴۱۵	۱۶,۲
۲۳۵	۳۵	۷۱۰	۳۸۰	۱۵,۱
۲۰۰	۳۳	۵۹۰	۳۲۰	۱۳,۳

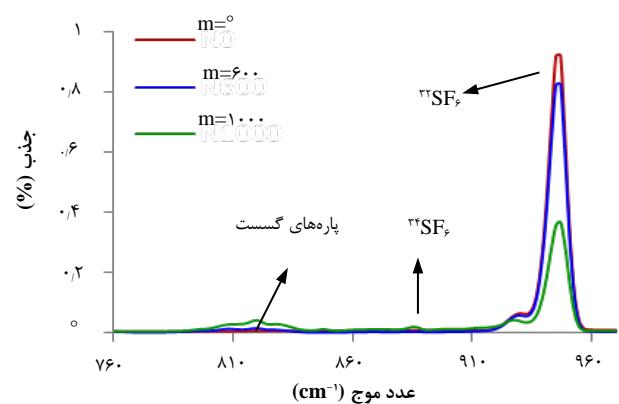
ترمودینامیکی اولیه، باز هم شکل تپ‌های فروودی همان رفتاری را از خود نشان می‌داد که در پایان تابش‌دهی طولانی و پیوسته داشت.

بر پایه این یافته‌ها، می‌توان با قاطعیت گفت که تغییر شکل تپ‌های عبوری با تغییرات شیمیایی برگشت‌ناپذیری در مولکول‌های گاز همراه است، که مستقیماً با فرایند جذب تشديدي در آن مرتبط است.

### ۲.۱.۳ بیناب‌سنجی FTIR

با این همه، به همین بسنده نشد و برای دست‌یابی به شواهد مستقیمی از این تغییرات شیمیایی، برنامه‌ای برای بیناب‌سنجی گاز تابش‌دهی شده در پیش گرفته شد. در این مرحله، برای اثبات وجود پدیده گسست چندفوتونی و نمایش تغییرات FTIR شیمیایی در گاز تابش‌دهی شده، از بیناب‌سنجی FTIR نمونه‌های گاز تابش‌دهی شده سود جسته شد. برای بهتر دیده شدن فرایند گسست چندفوتونی و در دست داشتن یک مرجع مناسب برای مقایسه داده‌ها، همه بیناب‌سنجی‌ها در حالت فشار مؤثر انجام شدند، زیرا همان‌گونه که گفته شد، این فشاری است که در آن انرژی میخه تپ لیزری به  $5\%$  از اندازه اولیه‌اش کاهش می‌یابد. از این‌رو، می‌توان نتیجه گرفت که اگر فرایند گسست چندفوتونی مولکول‌های  $\text{SF}_6$  همراه با این تابش‌دهی‌ها روی دهد و مسئول واقعی تغییرات پدید آمده در شکل تپ‌های عبوری باشد، پس باید در این شرایط، فراوانی و شدت چشمگیری داشته باشد.

بیناب‌های پی در پی به دست آمده از تابش‌دهی‌ها به‌گونه‌ای یک‌جا در شکل ۵ نمایش داده شده است. این بیناب‌ها برای تعداد تپ‌های گوناگون خط  $(10\text{P}(20))$  با شاریدگی حجمی  $\varphi_{Vs} = ۳۳۰\text{ J/cm}^2$  در فشار مؤثر  $40\text{ mbar}$  گرفته شده است.



شکل ۵. بیناب FTIR از اتفاق پرشده از گاز  $\text{SF}_6$  که با تعداد تپ‌های مختلف از خط  $(10\text{P}(20))$  با شاریدگی  $\varphi_{Vs} = ۳۳۰\text{ J/cm}^2$  تابش‌دهی شده است.



دنباله تپ‌ها نیز دیده می‌شود، که مربوط به بازترکیب آنی مولکول‌های گسسته و نیز فرایند پخش مولکول‌های پیرامونی حجم برهمنش است. روشن است که، با افزایش فشار گاز تا بالاتر از فشار قطع، مولکول‌های SF<sub>6</sub> بیشتر بر جا می‌مانند، که می‌توانند دنباله تپ‌ها را جذب نمایند. این رفتار در آزمایش‌ها نیز به خوبی دیده شد.

بدین ترتیب، با تحلیل بیناب‌سننجی FTIR گازهای تابش‌دهی شده، شواهدی تجربی ارائه شد که به روشنی نقش کلیدی فرایند گسست چندفوتونی IR لیزری در مولکول‌های SF<sub>6</sub> در حذف میخه تپ‌های لیزری CO<sub>2</sub> را آشکار می‌سازد.

#### ۴. نتیجه گیری

در این پژوهش، چگونگی کاهش دامنه میخه نسبت به دامنه دنباله برای تپ‌های کانونی شده خط (۲۰P۱۰) لیزر TEA CO<sub>2</sub> که از میان اتفاق پرشده از مولکول‌های SF<sub>6</sub> در گستره فشار ۱۵۰-۱۵۰ mbar عبور می‌کنند، بررسی شده است. فشارهای قطع برای هر شاریدگی حجمی به دست آمده است، فشاری که میخه تپ‌ها به طور کامل ناپدید گردید و تپی بلند و بدون میخه با ۳-۵ μs میکروثانیه پهنا بر جا گذاشته است.

دستکاری دلخواه انرژی و نیز نسبت توان بیشینه میخه و دنباله تپ‌های لیزری عبور یافته، با تنظیم فشار گاز در دسترس قرار گرفته است. با تحلیل بیناب‌سننجی FTIR گازهای تابش‌دهی شده، نشان داده شد که فرایند گسست چندفوتونی لیزری IR مولکول‌های SF<sub>6</sub> در این شرایط رخ می‌دهد.

از سوی دیگر، انرژی میخه تپ ورودی به اتفاق با رابطه زیر داده می‌شود:

$$E_p = n \varepsilon_p = \frac{n h c}{\lambda} \quad (4)$$

که در آن  $c$  و  $\lambda$  به ترتیب سرعت نور و طول موج لیزر فرودی و  $h$  ثابت پلانک و  $n$  تعداد فوتون‌های موجود در میخه تپ فرودی است.

از سویی، با توجه به هندسه تابش‌دهی، حجم برهمنش برای روزنه با قطر ۱۷ mm برابر با ۱۶ cm<sup>3</sup> به دست می‌آید. بنابراین با توجه به مطالب گفته شده، در دمای اتفاق، تعداد متوسط فوتون‌هایی که برای گسست همه مولکول‌ها درون حجم تابش‌دهی مصرف می‌شود، از تقسیم رابطه (۴) بر رابطه (۳) به دست می‌آید:

$$\frac{n_s}{N_d} = ۳۹/۴ \frac{E_p}{pd} \quad (5)$$

که انرژی میخه تپ ورودی به اتفاق،  $P$  فشار درون اتفاق و  $d$  قطر پرتو فرودی به درون اتفاق است. بنابراین در شاریدگی‌های گوناگون می‌توان تعداد متوسط فوتون‌هایی که برای گسست همه مولکول‌های درون حجم تابش‌دهی مصرف می‌شوند، به دست آورد.

بررسی داده‌های جدول ۱ آشکار می‌سازد که میانگین نسبت تعداد فوتون‌های میخه تپ فرودی به تعداد همه مولکول‌ها درون حجم تابش‌دهی نزدیک به  $n_s/N_d = ۱۶$  است (با فرض انرژی میخه تپ لیزری). این مقادیر با مقادیر گزارش شده در پژوهش‌های قبلی سازگاری خوبی دارد [۲۱، ۱۷]. همچنین در فشارهای قطع برای هر شاریدگی، انرژی لازم برای گسست همه مولکول‌های SF<sub>6</sub> در حجم گسست  $E_d$ ، با تقریب بسیار خوبی برابر با انرژی میخه تپ  $E_s$  است.

روی هم رفته، برایه همه این داده‌های عددی و تجربی، می‌توان رفتار دیده شده در شکل تپ‌های عبوری از گاز SF<sub>6</sub> را این‌گونه توضیح داد که، در این شرایط انرژی میخه تپ‌های فرودی تقریباً به طور کامل برای گسست چندفوتونی مولکول‌های درون حجم تابش‌دهی مصرف می‌شود. آنگاه، دنباله تپ، از میان حجمی تقریباً خالی شده از مولکول‌های جاذب SF<sub>6</sub> عبور می‌نماید. با این وجود، افت بسیار کمی در دامنه



1. O. Wood, P. Gordon, S. Schwarz, *Saturation of infrared absorption in gaseous molecular systems*, *IEEE J. Quantum Electron.*, **5(10)**, 502-513 (1969).
2. C.K. Rhodes, A. Szöke, *Transmission of Coherent Optical Pulses in Gaseous SF<sub>6</sub>*, *Phys. Rev. Lett.*, **184(1)**, 25 (1969).
3. J. Armstrong, O. Gaddy, *Saturation behavior of SF<sub>6</sub> at high pressure and laser intensity*, *IEEE J. Quantum Electron.*, **8(10)**, 797-802 (1972).
4. H. Stafast, W.E. Schmid, K.L. Kompa, *Absorption of CO<sub>2</sub> laser pulses at different wavelengths by ground-state and vibrationally heated SF<sub>6</sub>*, *Opt. Commun.*, **21(1)**, 121-126 (1977).
5. E.A. Ballik, et al., *High pressure SF<sub>6</sub> pulse transmission near 10.4 μm*, *Can. J. Phys.*, **55(22)**, 1956-1961 (1977).
6. B.K. Garside, R.S. Taylor, E.A. Ballik, *Saturation characteristics of SF<sub>6</sub> absorption at the 10.4 μm band of CO<sub>2</sub>*, *Can. J. Phys.*, **55(10)**, 849-854 (1977).
7. I. Kitazama, *Nonlinear absorption of SF<sub>6</sub> with He and H<sub>2</sub> additives for a TEA CO<sub>2</sub> laser*, *Opt. Commun.*, **53(1)**, 27-32 (1985).
8. T.F. Deutsch, S.R.J. Brueck, *v3 mode absorption behavior of CO<sub>2</sub> laser excited SF<sub>6</sub>*, *J. Chem. Phys.*, **70(5)**, 2063-2073 (1979).
9. I. Kitazima, H. Iwasawa, *Slow Relaxation Processes in SF<sub>6</sub> Gas After Pumping by a CO<sub>2</sub> Laser Pulse*, *Laser Chemistry*, **11(1)**, 39-48 (1991).
10. H. Kleiman, S. Marcus, *CO<sub>2</sub> laser pulse shaping with saturable absorbers*, *J. Appl. Phys.*, **44(4)**, 1646-1648 (1973).
11. V.N. Bagratashvili, V.N. Burimov, A.P. Sviridov, *Change in the profile of a high-power infrared laser pulse during its passage through an absorbing molecular gas*, *Sov. J. Quantum Electron.*, **15(2)**, 283 (1985).
12. I. Burak, J.I. Steinfeld, D.G. Sutton, *Infrared saturation in sulfur hexafluoride*, *J. Quant Spectrosc Radiat Transf*, **9(7)**, 959-980 (1969).
13. R.S. Taylor, et al., *A vibrational-bath model for the dynamics of SF<sub>6</sub> absorption near 10.4 μm as a function of wavelength and absorbed energy*, *J. Appl. Phys.*, **48(11)**, 4435-4443 (1977).
14. K. Silakhori, et.al., *Utilizing NH<sub>3</sub> laser pulses in multiphoton dissociation process of CCl<sub>4</sub> molecules with <sup>13</sup>C isotope selectivity*, *JonSat*, **30**, 38-45 (2009), (In Persian).
15. E.P. Velikhov, et al., *Isotope separation by multiphoton dissociation of molecules with high-power CO<sub>2</sub> laser radiation*, *I. Practical Methods*, *Quantum Electron.*, **9(2)**, 179 (1979).
16. K.J. Olszyna, et al., *Megawatt infrared laser chemistry. II. Use of SiF<sub>4</sub> as an inert sensitizer*, *Tetrahedron Lett.*, **18(19)**, 1609-1612 (1977).
17. A.T. Znotins, *Absorption Properties of SF<sub>6</sub> near 10.6 μm*, M.S.C thesis., McMaster University, (1978).
18. P. Mathieu, G. Otis, *High Efficiency, Tail-Free Pulses From TEA-CO<sub>2</sub> Lasers*, In *Laser Radar Technology and Applications I*, **663**, 74-78, SPIE. (1986).
19. P. Deb, U.K. Chatterjee, *A model for short pulse absorption in a real SF<sub>6</sub> saturable absorber*, *Opt. Quantum Electron.*, **25**, 113-122 (1993).
20. J.L. Lyman, S.D. Rockwood, S.M. Freund, *Multiple-photon isotope separation in SF<sub>6</sub>: Effect of laser pulse shape and energy, pressure, and irradiation geometry*, *J. Chem. Phys.*, **67(10)**, 4545-4556 (1977).
21. J.G. Black, et al., *Collisionless Multiphoton Dissociation of SF<sub>6</sub>: A Statistical Thermodynamic Process*, *Phys. Rev. Lett.*, **38(20)**, 1131 (1977).

**COPYRIGHTS**

©2021 The author(s). This is an open access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution (CC BY 4.0), which permits unrestricted use, distribution, and reproduction in any medium, as long as the original authors and source are cited. No permission is required from the authors or the publishers.



استناد به این مقاله

صالحه بهشتی‌پور، جواد کریمی‌ثابت، رضا نشاطی، داود احمدپور (۱۴۰۲)، نقش پدیده گسست چندفوتونی در شکل‌دهی تپه‌های لیزرهای CO<sub>2</sub> TEA ۱۰۶-۱۲۱-۱۲۹DOI: [10.24200/nst.2022.1198.1779](https://doi.org/10.24200/nst.2022.1198.1779)Url: [https://jonsat.nstri.ir/article\\_1518.html](https://jonsat.nstri.ir/article_1518.html)