

УДК 621.373.826.038

ИССЛЕДОВАНИЕ РЕЛАКСАЦИОННЫХ ХАРАКТЕРИСТИК CH_3Br -ЛАЗЕРА С ОПТИЧЕСКОЙ НАКАЧКОЙ

В. М. Бакуменко, Л. Д. Фесенко, А. С. Шевырев

Получены компоненты скорости колебательной релаксации лазерного перехода на длине волны 715 мкм молекулы CH_3Br путем исследования переходных характеристик в диапазоне давлений и последующей обработки результатов с применением модели лазера. Учет в используемой модели $V-V$ -взаимодействия накачиваемого колебательного состояния с возбужденными колебательными состояниями позволяет по экспериментальным значениям скоростей затухания компонент переходного процесса определить скорость колебательной релаксации.

Одним из методов определения релаксационных параметров лазеров с оптической накачкой (ЛОН) является исследование формы выходного сигнала лазера при ступенчатой накачке. В работе [1] этим методом была найдена скорость колебательной релаксации лазерного перехода на длине волны 496 мкм молекулы CH_3F в предположении, что лазер работает в режиме, далеком от насыщения. В данной работе путем анализа осциллограмм откликов на ступенчатый сигнал накачки и последующего сравнения с теоретической моделью проведено исследование релаксационных характеристик CH_3Br -лазера на длине волны 715 мкм; используемая методика учитывает эффекты насыщения и позволяет вводить соответствующие поправки при определении скорости колебательной релаксации.

1. Описание экспериментальной установки. Исследование релаксационных процессов производилось с помощью установки, функциональная схема которой показана на рис. 1.

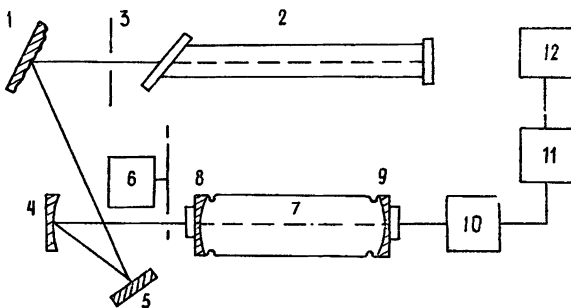


Рис. 1.

Перестраиваемый посредством дифракционной решетки 1 CO_2 -лазер 2 работал в непрерывном режиме с выходной мощностью до 20 Вт, которая регулировалась ирисовой диафрагмой 3. С помощью системы зеркал 4, 5 через отверстие связи диаметром 1,5 мм, находящееся в центре зеркала 8, излучение вводилось в субмиллиметровую ячейку 7 длиной 1,2 м и диаметром 0,1 м. Давление в ячейке могло регулироваться в пределах 0,01 — 0,5 мм рт. ст. Резонатор был образован зеркалами 8 и 9 диаметром 0,1 м и радиусом кривизны 0,9 м; через отверстие диаметром 4 мм в центре зеркала 9 производился вывод субмиллиметрового излучения. В фокусе зеркала 5 располагался дисковый

модулятор δ , обеспечивающий ступенчатый сигнал накачки. Частота вращения модулятора подбиралась таким образом, чтобы на экране осциллографа 12 можно было наблюдать как переходный процесс, так и стационарный режим генерации. Такой режим обеспечивался при длительности сигнала накачки порядка 40 мс; длительность переднего фронта при этом составляла $10 - 20$ мкс. Прием субмиллиметрового излучения осуществлялся точечно-контактным детектором 10 на паре InSb — бериллиевая бронза с пороговой чувствительностью $5 \cdot 10^{-10}$ Вт·Гц $^{-1/2}$. Продетектированный сигнал через усилитель 11 поступал на вход осциллографа.

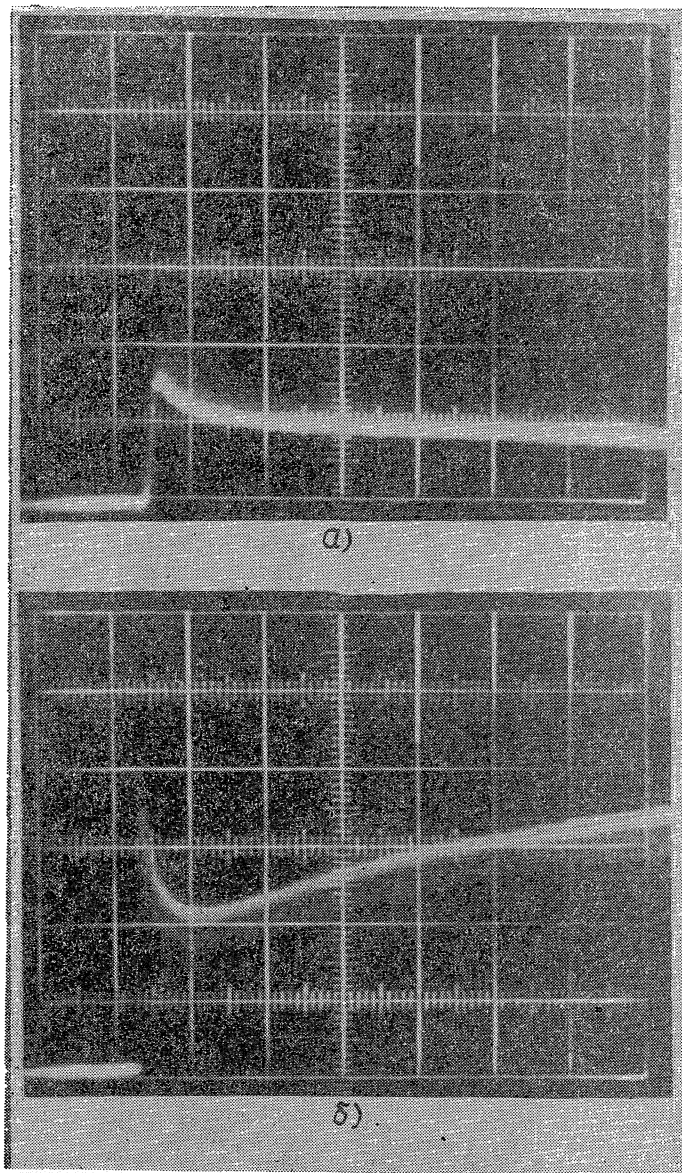


Рис. 2.

2. Результаты эксперимента. На рис. 2 представлены осциллограммы выходного сигнала лазера на переходе $P_{3(22)}$ (в колебательном состоянии ν_6) молекулы $\text{CH}_3^{79}\text{Br}$ (длина волны $715,4$ мкм) при ступенчатой накачке CO_2 -лазером, работающим на переходе $R14$ (длина волны $10,28$ мкм) с выходной мощностью 10 Вт. Для наблюдаемых сигналов характерными являются два режима. Для первого из них (рис. 2а, давление $0,026$ мм рт. ст., длительность развертки $0,5$ мс/дел., чув-

чувствительность 2 мВ/дел.) после возрастающего участка, определяемого скоростью нарастания переднего фронта импульса накачки, наблюдается спад сигнала к стационарному значению сначала с большей скоростью, затем с меньшей. Для второго режима (рис. 2б, давление 0,1 мм рт. ст., длительность развертки 0,5 мс/дел., чувствительность 5 мВ/дел.) последний участок является не убывающим, а возрастающим. Переход от первого режима ко второму может быть осуществлен путем увеличения давления либо уменьшения мощности накачки. При данной мощности накачки лазерная генерация наблюдалась в диапазоне давлений $p=0,025-0,12$ мм рт. ст.; при этом переход от одного режима к другому, характеризующийся наличием только первого участка, происходит при давлении $p=0,06$ мм рт. ст.

Анализ полученных осциллограмм показывает, что для обоих режимов затухание на каждом из участков носит экспоненциальный характер. Обработка сигнала проводилась следующим образом. Участок сигнала, на котором затухание происходило с меньшей скоростью λ_M (медленная компонента), экстраполировался к началу координат, что позволяло определить начальное значение медленной компоненты A_M . Затем медленная компонента вычиталась из общего сигнала и определялись скорость затухания λ_B и начальное значение A_B быстрой компоненты.

Зависимость скорости затухания быстрой компоненты от давления $\lambda_B(p)$, полученная при постоянной мощности накачки, как следует из рис. 3, является близкой к линейной. После усреднения результатов получаем прямую линию, из наклона которой следует, что $\lambda_B = 50 \pm 5$ (мс)⁻¹(мм рт. ст.)⁻¹, где погрешность представляет среднее квадратическое отклонение результата измерений. Зависимость скорости затухания медленной компоненты от давления $\lambda_M(p)$ приведена на рис. 4. В области высоких давлений $\lambda_M(p)$ близка к линейной, а по мере уменьшения давления наблюдается отклонение от линейной зависимости в сторону возрастания λ_M .

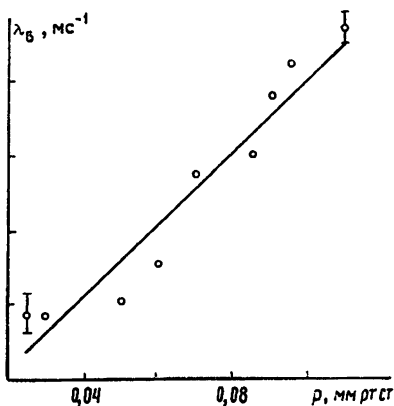


Рис. 3.

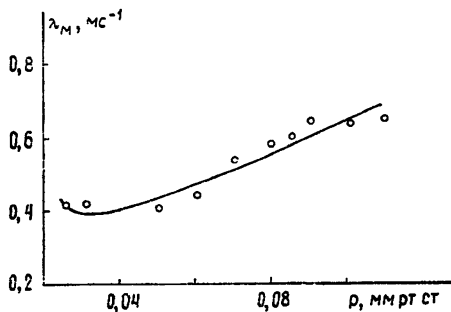


Рис. 4.

В отсутствие насыщения выходная мощность пропорциональна разности населенностей вращательных уровней, между которыми имеет место субмиллиметровый переход. Поэтому для объяснения полученных результатов необходимо рассмотреть процессы вращательной (R), колебательно-колебательной ($V-V$) и колебательной (V) релаксаций, определяющие населенности указанных уровней. Поскольку скорость вращательной релаксации намного больше скорости нарастания переднего фронта импульса накачки, процессы, определяемые вращательной релаксацией, экспериментально не наблюдаются.

$V-V$ -релаксация в молекуле CH_3Br была исследована в работе [2] путем наблюдения сигнала флуоресценции с возбужденных колебательных состояний при накачке импульсным CO_2 -лазером в состо-

яние ν_6 . Скорости $V-V$ -переходов между состояниями $\nu_6 - \nu_3$, $\nu_6 - \nu_2$ и $\nu_6 - \nu_5$ составляли соответственно 40, 105 и $112(\text{мс})^{-1}(\text{мм рт. ст.})^{-1}$. Полученные в данной работе скорость затухания быстрой компоненты $50(\text{мс})^{-1}(\text{мм рт. ст.})^{-1}$ и ее зависимость от давления дают основание полагать, что быстрая компонента определяется процессами $V-V$ -релаксации накачиваемого состояния с колебательным состоянием ν_3 . Отличие полученной скорости затухания от скорости, найденной в работе [2], очевидно, вызвано вкладом от взаимодействия ν_6 с другими возбужденными состояниями, в том числе ν_2 и ν_5 .

Зависимость $\lambda_m(p)$ является характерной для скорости затухания колебательной релаксации. В области высоких давлений основной вклад дают столкновительные ($V-T$) процессы, скорость которых пропорциональна давлению, а по мере снижения давления начинают сказываться процессы диффузии, скорость которых обратно пропорциональна давлению, что приводит к отклонению зависимости $\lambda_m(p)$ от линейной.

Для объяснения перехода медленной экспоненты через нулевое значение необходим дополнительный анализ, который мы проведем на модели лазера на молекуле CH_3Br .

3. Анализ модели ЛОН. Выбранная нами модель ЛОН на молекуле CH_3Br приведена на рис. 5. Рабочий газ с общим числом молекул N при давлении p и температуре T в основном колебательном состоянии имеет населенность N_0 . В этом состоянии находится нижний лазерный уровень n_1 . Верхний (n_2) и промежуточный (n_3) уровни расположены в возбужденном колебательном состоянии ν_6 с населенностью N_6 . С полем накачки взаимодействуют уровни 1 и 2, с полем излучения — 2 и 3. Эти же уровни взаимодействуют с остальными вращательными уровнями вследствие процессов вращательной релаксации, скорость которой Γ_R будем считать одинаковой для всех уровней.

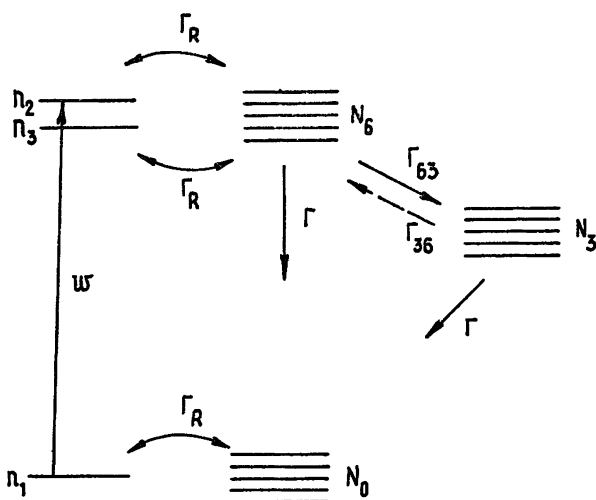


Рис. 5.

Накачиваемое колебательное состояние взаимодействует с другими вследствие процессов $V-V$ -релаксации; для простоты будем учитывать взаимодействие только с одним возбужденным колебательным состоянием ν_3 с населенностью N_3 . Скорость перехода молекул из состояния ν_6 в состояние ν_3 вследствие процессов $V-V$ -релаксации обозначим Γ_{63} , скорость обратного перехода — Γ_{36} . И, наконец, колебательные состояния ν_6 и ν_3 взаимодействуют с основным вследствие процессов колебательной релаксации, скорость которой для обоих состояний будем считать одинаковой и обозначим Γ .

Полагая для простоты, что накачка производится в центр линии поглощения, статистические веса вращательных уровней примерно

Одинаковы ($g_1 \approx g_2 \approx g_3$), и пренебрегая изменением населенности, вызванным субмиллиметровым переходом, кинетические уравнения для населенностей можно представить в виде

$$dn_{12}/dt = -(\Gamma_R + 2\omega)n_{12} + f_1\Gamma_R N_0 - f_2\Gamma_R N_6; \quad (1)$$

$$dn_{23}/dt = -\omega n_{23} + (f_2 - f_3)\Gamma_R N_6; \quad (2)$$

$$dN_6/dt = \omega n_{12} - \Gamma_{63}N_6 + \Gamma_{36}N_3 - \Gamma N_6; \quad (3)$$

$$dN_3/dt = \Gamma_{63}N_6 - \Gamma_{36}N_3 - \Gamma N_3, \quad (4)$$

где $n_{12} = n_1 - n_2$, $n_{23} = n_2 - n_3$, ω — скорость накачки, f_1 , f_2 и f_3 — относительные населенности уровней n_1 , n_2 и n_3 .

Подставляя в уравнение (1) значение N из условия постоянства общего числа взаимодействующих молекул

$$N_0 + N_6 + N_3 = N, \quad (5)$$

из решения системы (1)–(4) находим входящую в выражение для выходной мощности разность населенностей уровней 2 и 3 n_{23} , которая в случае действительных и различных корней характеристического уравнения системы (1)–(4) имеет вид

$$n_{23} = A_0 + A_1 e^{-\lambda_1 t} + A_2 e^{-\lambda_2 t} + A_3 e^{-\lambda_3 t}, \quad (6)$$

где A_0 — стационарная составляющая, A_1 – A_3 — константы, определяемые из начальных условий, λ_1 – λ_3 — корни характеристического уравнения.

При слабом насыщении, когда $\omega \ll \Gamma_R$, выражения для корней можно представить в виде

$$\lambda_{1,2} = b \mp \sqrt{b^2 - c}; \quad (7)$$

$$\lambda_3 = \Gamma_R + 2\omega, \quad (8)$$

где

$$b = [\Gamma_{63} + \Gamma_{36} + 2\Gamma + (f_1 + f_2)\omega]/2; \quad (9)$$

$$c = \Gamma(\Gamma_{63} + \Gamma_{36} + \Gamma) + (f_1 + f_2)\omega(\Gamma_{36} + (1/2)\Gamma_{63} + \Gamma). \quad (10)$$

Для удобства анализа, полагая для простоты $f_1 = f_2$, запишем приближенные значения корней λ_1 и λ_2 , которыми можно пользоваться при очень слабом насыщении ($\omega \ll \Gamma/2f_1$):

$$\lambda_1 = \Gamma + f_1\omega(1 + (\Gamma_{36}/(\Gamma_{63} + \Gamma_{36}))); \quad (11)$$

$$\lambda_2 = \Gamma_{63} + \Gamma_{36} + \Gamma + f_1\omega(1 - (\Gamma_{36}/(\Gamma_{63} + \Gamma_{36}))). \quad (12)$$

Из выражения для корней (11), (12) и (8) следует, что λ_1 характеризует скорость затухания медленного процесса, λ_2 — скорость затухания быстрого процесса, λ_3 определяет процесс, связанный с вращательной релаксацией, а допущение о том, что корни действительны и различны, является справедливым. Тогда на основании выражения (6) можно считать, что A_1 соответствует экспериментально наблюдаемому значению A_M , а A_2 — значению A_6 . Если учесть конечную скорость нарастания переднего фронта импульса накачки β путем домножения скорости накачки на множитель $(1 - e^{-\beta t})$, то, переходя от ступенчатой накачки к накачке с конечным временем нарастания переднего фронта, с помощью метода интеграла Дюамеля получаем при условии $\Gamma_R \gg \beta \gg \lambda_1, \lambda_2$ следующее приближенное выражение:

$$n_{23} \approx A_0 + A_1 e^{-\lambda_1 t} + A_2 e^{-\lambda_2 t} - (A_0 + A_1 + A_2)e^{-\beta t}, \quad (13)$$

подтверждающее, что при выполнении неравенства $\Gamma_R \gg \beta$ в переходном процессе компонента, определяющая процесс вращательной релаксации, не наблюдается.

4. Обсуждение результатов. Для анализа компоненты, характеризующей медленный процесс, и сопоставления с результатами эксперимента запишем выражение для A_1 , используя для этого начальные условия. Поскольку в отсутствие накачки населенность возбужденных колебательных состояний намного меньше населенности основного состояния, можно положить, что $N_0(0) = N$, $n_{12}(0) = f_1 N$, $n_{23}(0) = 0$, $N_6(0) = 0$. В этом случае для A_1 получаем

$$A_1 = \frac{f_1(f_3 - f_2)N\Gamma_R\omega}{\lambda_1\lambda_2} \left(1 - \frac{N_3^0\lambda_1}{f_1N\omega}\right), \quad (14)$$

где $N_3^0 = N_3(0)$ — начальная населенность состояния v_3 .

Таблица 1

Зависимость N^0/f_1N от номера возбужденного колебательного состояния i , взаимодействующего с накачиваемым колебательным состоянием при $T = 300$ К

i	N^0/f_1N
1	$2,15 \cdot 10^{-4}$
2	0,637
3	17,8
4	$1,44 \cdot 10^{-4}$
5	0,325

Таблица 2

Значения параметров молекулы CH_3Br при $T = 300$ К, используемых при определении Γ

f_1	$2,97 \cdot 10^{-3}$
f_2	$2,97 \cdot 10^{-3}$
N_3^0/N	$5,28 \cdot 10^{-2}$
Γ_{63}	$32 (\text{мс})^{-1} (\text{мм рт. ст.})^{-1}$
Γ_{36}	$12 (\text{мс})^{-1} (\text{мм рт. ст.})^{-1}$

Из анализа выражения (14) следует, что знак A_1 определяется коэффициентом

$$\kappa = 1 - \frac{N_3^0\lambda_1}{f_1N\omega}, \quad (15)$$

величина которого зависит от начальной населенности N_3^0 колебательного состояния v_3 , с которым взаимодействует накачиваемое колебательное состояние v_6 . Как следует из табл. 1, составленной на основе молекулярных постоянных молекулы CH_3Br , взятых из работы [3], величина N_i^0/f_1N , где i — номер возбужденного колебательного состояния, для состояния v_3 значительно больше, чем для остальных колебательных состояний, поэтому при анализе компоненты A_1 достаточно ограничиться только учетом $V - V$ -взаимодействия состояний v_6 и v_3 . Из равенства нулю выражения (15) после подстановки в него экспериментально полученного значения $p = 0,06$ мм рт. ст. находим скорость накачки $\omega = 0,4 (\text{мс})^{-1}$ мм рт. ст., что позволяет использовать ее для решения уравнения (7). Подставляя в выражения (11) и (12) значения констант молекулы CH_3Br , взятых из работ [2] и [3] и приведенных в табл. 2, получаем из (7), используя экспериментальные зависимости $\lambda_i(p)$ и $\lambda_2(p)$, зависимость скорости колебательной релаксации от давления $\Gamma(p)$, графически представленную на рис. 6. Сопоставляя $\Gamma(p)$ с приведенной на рис. 4 зависимостью $\lambda_m(p)$, можно охарактеризовать величину насыщения перехода по накачке: поскольку скорость накачки обратно пропорциональна давлению, в области высоких давлений λ_m и Γ отличаются незначительно, а по мере перехода к низким давлениям расхождение между ними увеличивается. Следовательно, эффект насыщения проявляется не только в стационарном режиме, приводя к снижению коэффициента усиления, но и в переходном режиме, изменяя скорости затухания релаксационных компонент и, в особенности, медленной, связанной с процессами колебательной релаксации.

Представляя Γ в виде

$$\Gamma = \Gamma_{v-T} + \Gamma_{\text{диф}}, \quad (16)$$

где Γ_{V-T} — скорость столкновительных процессов, пропорциональная давлению, а $\Gamma_{\text{диф}}$ — скорость диффузии, обратно пропорциональная давлению, и решая (16) в диапазоне исследуемых давлений относительно Γ_{V-T} и $\Gamma_{\text{диф}}$, получаем, что наилучшим приближением являются приведенные на рис. 6 зависимости $\Gamma_{V-T}(p)$ и $\Gamma_{\text{диф}}(p)$, из которых следует, что $\Gamma_{V-T} = 6(\text{мм рт. ст.})^{-1} (\text{мс})^{-1}$, а $\Gamma_{\text{диф}} = 4 \cdot 10^{-3} (\text{мс})^{-1} (\text{мм рт. ст.})^{-1}$.

Таким образом, предложенная модель ЛОН на молекуле CH_3Br , учитывающая в рамках теории кинетических уравнений $V-V$ -взаимодействие накачиваемого колебательного состояния ν_6 с возбужденным колебательным состоянием ν_3 , энергетически расположенным ниже накачиваемого, позволяет путем исследования отклика выходного сигнала на ступенчатый сигнал накачки определить компоненты скорости колебательной релаксации.

Для этой цели путем изменения давления и мощности накачки подбирается такой режим работы лазера, при котором самая медленная компонента переходного процесса обращается в нуль, и в окрестности этого режима измеряется зависимость скорости затухания этой компоненты от давления при постоянной мощности накачки. Условие равенства нулю начального значения медленной компоненты позволяет от полученных экспериментально скоростей затухания перейти с помощью модели к определению скорости колебательной релаксации и ее зависимости от давления $\Gamma(p)$. Представляя затем $\Gamma(p)$ в виде суммы столкновительной и диффузионной компонент и учитывая характер зависимости последних от давления, можно определить компоненты скорости колебательной релаксации Γ_{V-T} и $\Gamma_{\text{диф}}$.

ЛИТЕРАТУРА

1. Dangoisse D., Glorieux P., Wascot J. — Intern. Journ. Infrared Millimeter Waves, 1981, 2, № 2, p. 215.
2. Earl B. L., Rohm A. M. — Chem. Phys., 1976, 12, № 1, p. 113.
3. Таунс Ч., Шавлов А. Радиоспектроскопия. — М.: ИЛ, 1959, с. 77.

Украинский заочный
политехнический институт,
Харьковский государственный
университет

Поступила в редакцию
26 ноября 1985 г.

THE INVESTIGATION OF OPTICAL PUMPING CH_3Br -LASER RELAXATION CHARACTERISTICS

V. M. Bakumenko, L. D. Fesenko, A. S. Shevyrev

The components of vibrational relaxation rate for laser transition of the 715 mm wavelength of CH_3Br -molecule are obtained with the help of transit characteristics investigation in the pressure range and further processing the results obtained applying a laser model. The consideration of the $V-V$ interaction between the pumped and excited vibrational relaxation states in this model allows one to define the vibrational relaxation rate using the experimental values of the transient process damping rate.

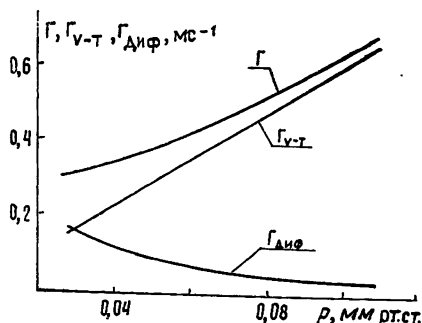


Рис. 6.