

23

**И Н С Т И Т У Т  
Я Д Е Р Н О Й Ф И З И К И С О А Н С С С Р**

И Я Ф 36 - 72

В.В.Данилов, Э.П.Кругляков, Е.В.Шуныко

**ИЗМЕРЕНИЕ ВЕРОЯТНОСТИ ПЕРЕХОДА  
 $R_{20}(00^{\circ} 1-10^{\circ} 0)CO_2$  И УДАРНОГО УШИРЕНИЯ  
ПРИ СТОЛКНОВЕНИЯХ с  $CO_2, N_2$  и He**

Новосибирск

1972

ИЗМЕРЕНИЕ ВЕРОЯТНОСТИ ПЕРЕХОДА  $P_{20}(00^0_1-10^0_0)CO_2$   
И УДАРНОГО УШИРЕНИЯ ПРИ СТОЛКНОВЕНИЯХ С  $CO_2$ ,  
 $N_2$  И He

В.В.Данилов, Э.П.Кругляков, Е.В.Шуныко

А Н Н О Т А Ц И Я

Для колебательно-вращательного перехода  $P_{20}(00^0_1-10^0_0)CO_2$  с использованием в качестве источника света  $CO_2$  ОКГ измерена зависимость коэффициента поглощения от давления. Рассмотрен вопрос о систематической ошибке, обусловленной вкладом ударного уширения, при нахождении вероятности перехода из экспериментальной кривой поглощения. Уточненное значение вероятности перехода  $A_{10^0_0,20}^{00^0_1,19} = 0,169 \text{ сек}^{-1}$ . Получены величины ударных полуширин для соударений типа  $CO_2-CO_2$ ,  $CO_2-N_2$ ,  $CO_2-He$ , которые при  $T=300^\circ K$  соответственно равны  $3,28 \frac{\text{МГц}}{\text{тор}}$ ,  $2,74 \frac{\text{МГц}}{\text{тор}}$ ,  $2,27 \frac{\text{МГц}}{\text{тор}}$ .

ИЗМЕРЕНИЕ ВЕРОЯТНОСТИ ПЕРЕХОДА  $P_{20} (00^0 1-10^0) CO_2$   
И УДАРНОГО УШИРЕНИЯ ПРИ СТОЛКНОВЕНИЯХ С  $CO_2$ ,  
 $N_2$  И He

В.В.Данилов, Э.П.Кругляков, Е.В.Шуныко

Важнейшей характеристикой инверсной среды является разность заселенностей рабочих уровней. Обычно эта характеристика среды определяется через коэффициент усиления слабого сигнала:

$$\alpha_0 = \frac{\lambda^2}{8\pi} S(v_0) A_{v'j'}^{v''j''} \left[ n_{v'j'} - n_{vj} \frac{g_{v'j'}}{g_{vj}} \right] \quad (1)$$

Применительно к молекулярной среде индексы  $v'$ ,  $j'$  характеризуют колебательный и вращательный уровень верхнего, а  $v$ ,  $j$  - нижнего состояний. Соответственно  $\frac{g_{v'j'}}{g_{vj}}$  - отношение стат. ве- сов. В рассматриваемом далее случае переходов по Р-ветви

$\frac{g_{v'j'}}{g_{vj}} = \frac{2j-1}{2j+1}$ . Поскольку плотность инверсной заселенности пропорциональна  $[S(v_0) \cdot A_{v'j'}^{v''j''}]^{-1}$ , точность, с которой мо-

жет быть измерена инверсия, определяется тем, насколько надежно известны вероятность спонтанного испускания  $A_{v'j'}^{v''j''}$  и форм- фактор  $S(v_0)$  в центре линии. Последний в зависимости от условий описывается различными соотношениями. В области малых давлений, когда можно пренебречь ударным уширением

$$S(v_0) = S_D(v_0) = \frac{1}{\Delta V_D} \sqrt{\frac{\ln 2}{\pi}} \quad (2,а)$$

При больших давлениях, практически при  $\frac{\Delta V_{уд.}}{\Delta V_D} = \frac{\delta^0 V_{уд.}}{\Delta V_D} p > 4$  (здесь  $\delta^0 V_{уд.}$  -ударная полуширина, отнесенная к единичному давлению)

$$S(v_0) = S_{уд.}(v_0) = \frac{1}{\pi \delta^0 V_{уд.} \cdot p} \quad (2,в)$$

Наконец, в общем случае форм-фактор имеет вид:

$$S(v_0) = S_{\Sigma}(v_0) = \eta(p) \cdot \frac{1}{\Delta v_D} \sqrt{\frac{\ln 2}{\pi}} \quad (2, c)$$

Зависимость  $\eta(p) = S_{\Sigma}/S_D$  от  $\frac{\Delta v_{\text{чд}}}{\Delta v_D} \sqrt{\frac{\ln 2}{\pi}}$  изображена на фиг.1. При фиксированной температуре среды  $\eta$ , по-существу, является функцией от ударной полуширины. По этой причине дело сводится к отысканию  $A_{\nu_j}^{v_j'}$  и  $\delta^0 v_{\text{чд}}$ .

Из литературы известно достаточное количество работ, в которых приводятся значения вероятности спонтанного испускания

$A_{\nu_j}^{v_j'}$  для молекулы  $\text{CO}_2$ . К сожалению, разброс существующих данных довольно велик. В частности, значения величины  $A_{10^0 0,20}^{00^0 1,19}$  для молекулы  $\text{CO}_2$  лежат в интервале:  $0,32 \text{ сек}^{-1}/1/$  :  $0,1 \text{ сек}^{-1}/2/$ . В данных работах /3/ вероятности переходов определялись через интегральный коэффициент поглощения

$$\int k_{\nu} dv = \frac{c}{8\pi} n_{\nu_j} A_{\nu_j}^{v_j'} \frac{g_{v_j'}}{g_{\nu_j}} [1 - \exp(-\frac{h\nu}{kT})] \approx \frac{c}{8\pi \nu^2} n_{\nu_j} A_{\nu_j}^{v_j'} \frac{g_{v_j'}}{g_{\nu_j}} \quad (3)$$

Применительно к молекуле  $\text{CO}_2$  наиболее точным следует признать метод, в котором в качестве источника излучения используется  $\text{CO}_2$  ОКГ, работающий на одном вращательном переходе /4/. При использовании монохроматического источника излучения коэффициент поглощения (в центре линии) определяется выражением:

$$K_0 = -\frac{1}{l} \ln \frac{I}{I_0} = S(v_0) \int k_{\nu} dv \quad (4)$$

(  $I_0$  - мощность падающего излучения,  $I$  - мощность излучения, прошедшего сквозь среду длиной  $l$  ). Таким образом, эксперимент по нахождению  $A_{\nu_j}^{v_j'}$  сводится к измерению прозрачности  $\frac{I}{I_0}$  в центре линии поглощения в области малых давлений с последую -

щим проведением касательной к кривой  $\ln \frac{1}{I_0} = f(p)$ . Именно таким путем осуществлено измерение вероятности перехода в /4,5/. Однако, как отмечено в /6/, проведение касательной по экспериментальным точкам может привести к значительным систематическим ошибкам, поскольку даже в области давлений порядка нескольких тор нельзя пренебрегать вкладам ударного уширения в форм-фактор линии. Укажем, что величина систематической ошибки имеет следующий вид:

$$\frac{\Delta A_{\nu_j}^{v_j'}}{A_{\nu_j}^{v_j'}} \approx 2 \sqrt{\frac{\ln 2}{\pi}} \cdot \frac{\delta^0 v_{\text{чд}}}{\Delta v_D} p$$

и при  $p \sim 2$  тор достигает  $\sim 25\%$ .

#### ИЗМЕРЕНИЕ ВЕРОЯТНОСТИ ПЕРЕХОДА P20 МОЛЕКУЛЫ $\text{CO}_2$

Основное отличие экспериментов, описываемых ниже, от подобных экспериментов других авторов сводится к следующему. За счет хорошей воспроизводимости результатов и надежной регистрации малых давлений измерения пропускания в данной работе осуществлены в области  $p < 0,5$  тор. Схема эксперимента изображена на фиг.2. Источником излучения служил стабилизированный  $\text{CO}_2$  ОКГ (1) (длина 200 см, внутренний диаметр разрядной трубки  $\phi$  13 мм). Резонатор лазера образован сферическим зеркалом ( $R = 10\text{м}$ ) и плоскопараллельной германиевой пластинкой. После соответствующего ослабления фильтром (2) излучение вводилось в поглощающую ячейку, в качестве которой использовалась трехходовая кювета (3) с общей длиной пути  $l = 677$  см. Кювета предварительно откачивалась, после чего с помощью прецизионного натекателя в нее медленно напускался газ. Давление в кювете измерялось калиброванным радиационным вакуумметром, сигнал с которого после усиления электрометрическим усилителем подавался на горизонтальный вход двухкоординатного самописца (M-100 „Cimatic“). Система регистрации давлений обеспечивала хорошую линейность до  $p \sim 7$  тор. Одновременно на вертикальный вход самописца с детектора (5, Ge-Au) подавался сигнал, пропорциональный  $\frac{1}{I_0}$ . Отражательная эшеллетная решетка (4,  $50 \frac{\text{нм}}{\text{мм}}$ ) служила для идентификации перехода P20, на котором выполнены все эксперименты. Расстояние от ре -

шетки до детектора  $\sim 8$  м. Аппаратурные погрешности складывались из  $\frac{\Delta P}{P} = 0,4\%$  и  $\frac{\Delta T}{T} = 0,07\%$ . Нелинейность системы регистрации  $\sim 0,1\%$ .

Эксперименты проводились в интервале температур 283-293,5°K, однако все экспериментальные данные пересчитаны на 300°K.

Благодаря высокой стабильности ОКГ удалось осуществить измерения в области давлений  $p < 0,5$  тор (см. фиг.3, верхняя кривая). Каждая точка является результатом усреднения по 40 экспериментальным кривым. Вычисленная по углу наклона касательной вероятность перехода P20 приведена в таблице 1, в которой собраны, по-видимому, наиболее достоверные данные других авторов для того же перехода.

Т а б л и ц а 1

Авторы	/7/ <sup>x)</sup>	/5/	/4/	Данная работа
00° 1,19 00° 0,20 сек <sup>-1</sup>	0,213 ± 11%	0,192 ± 3,6%	0,164 ± 5%	0,169 ± 3%

Хорошее согласие наших данных с результатом работы /4/, по-видимому, означает, что вопреки утверждению, содержащемуся в /6/, авторы /4/ учли поправку, связанную с ударным уширением.

Ударное уширение столкновениями CO<sub>2</sub>-CO<sub>2</sub>

В случае больших давлений, когда можно пренебречь вкладом доплеровского уширения, коэффициент поглощения в центре линии, по-прежнему, определяется выражением (4), однако, с фактором (2,в).

Эксперимент, как и в первом случае сводился к регистрации относительной прозрачности среды  $\frac{I}{I_0}$ , однако, поскольку давление в наших условиях варьировалось в области  $p \leq 100$  тор, для его контроля при  $p > 7$  тор использовался образцовый монокуومتر.

х) в /7/ ОКГ работал одновременно на трех переходах (P18, P20, P22).

На фиг3 (внизу) изображена полная экспериментальная кривая пропускания кюветы в зависимости от давления. )Результаты пересчитаны на 300°K). Вычисленное по пропусканию на плато кривой значение  $\delta V_{\text{уд}}$  приведено в таблице II.

Т а б л и ц а II

Авторы	/4/	Результат Костоковс-кого (по /4/)	/7/	/5/	Данная работа
$\delta V_{\text{CO}_2-\text{CO}_2}$ , мгл/тор	3,19 ± (>5%)	3,32 ± 7%	3,12 ± 10%	5,2 ± 3%	3,28 ± 4%

За исключением /5/ результаты всех измерений хорошо между собой согласуются.

Уширение столкновениями CO<sub>2</sub>-N<sub>2</sub> и CO<sub>2</sub>-He

Как видно из таблицы II, в литературе имеется достаточное количество данных по ударному уширению при столкновениях типа CO<sub>2</sub>-CO<sub>2</sub>. Иначе обстоит дело с уширением посторонними газами. В /7/ приведены эффективные поперечники для столкновений типа CO<sub>2</sub>-X, приводящих к ударному уширению. В /8/ были проведены относительные измерения, в результате которых получены отношения ударных полуширин для нескольких газов.

В данной работе на переходе P20 были определены ударные полуширины для столкновений CO<sub>2</sub>-N<sub>2</sub> и CO<sub>2</sub>-He. Для получения корректных результатов чрезвычайно важна однородность смеси. В нашем случае перемешивание газов осуществлялось в отдельной камере с помощью мощного вентилятора, включавшегося на несколько минут. После этой процедуры приготовленная смесь напускалась в рабочую кювету. При многократных повторениях эксперимента парциальный состав смеси поддерживался постоянным ( $p_{\text{CO}_2}/p_x = 1$ ).

Значение полуширины, приведенное к одной атмосфере в случае уширения посторонним газом X определяется соотношением:

$$\delta V_{CO_2-X}^0 = -\frac{P_{CO_2}}{P_X} \left[ \frac{e \int k_v dv}{P_{CO_2} \cdot \ln \frac{I_0}{I}} + \delta V_{CO_2-CO_2}^0 \right] \quad (5)$$

(В последнем выражении  $\delta V_{CO_2-CO_2}^0$  и  $\delta V_{CO_2-X}^0$  - имеют размерность  $\text{см}^{-1} \cdot \text{атм}^{-1}$ ). Из (5) следует, что  $\delta V_{CO_2-X}^0$  определяется с наименьшей точностью, поскольку ошибка в определении полуширины включает в себя ошибки определения вероятности перехода и  $\delta V_{CO_2-CO_2}^0$ .

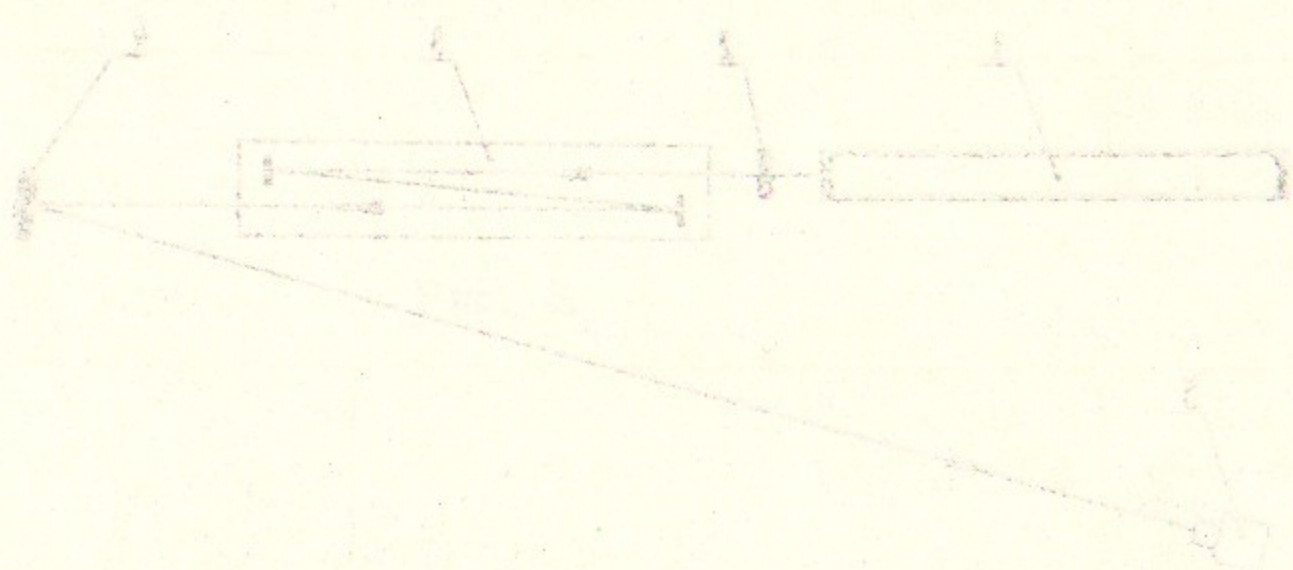
Таблица III

Авторы	/ 7 /	/ 8 /	Данная работа
$\delta V_{CO_2-N_2}$ мгн/тор	$8,12 \pm 10\%$	-	$2,74 \pm 7\%$
$\delta V_{CO_2-He}$ мгн/тор	$2,38 \pm 10\%$	-	$2,27 \pm 7\%$
$\frac{\delta V_{CO_2-N_2}}{\delta V_{CO_2-CO_2}}$	$1 \pm 20\%$	$0,75 \pm 4\%$	$0,84 \pm 11\%$
$\frac{\delta V_{CO_2-He}}{\delta V_{CO_2-CO_2}}$	$0,76 \pm 20\%$	$0,50 \pm 4\%$	$0,69 \pm 11\%$

В последнюю таблицу включены результаты, относящиеся к уширению азотом и гелием, полученные в /7,8/ и в наших экспериментах. Все величины даны для  $T=300^\circ\text{K}$ . С учетом ошибок эксперимента, приведенные в таблице III данные согласуются между собой. Небольшое расхождение, выходящее за пределы погрешностей, возникает при сравнении величины  $\frac{\delta V_{CO_2-He}}{\delta V_{CO_2-CO_2}}$ , полученной

в /8/ и в данной работе. Причина расхождения в настоящее время не ясна.

В заключение авторы выражают благодарность В.К.Конюхову за интерес к работе и ценные обсуждения.



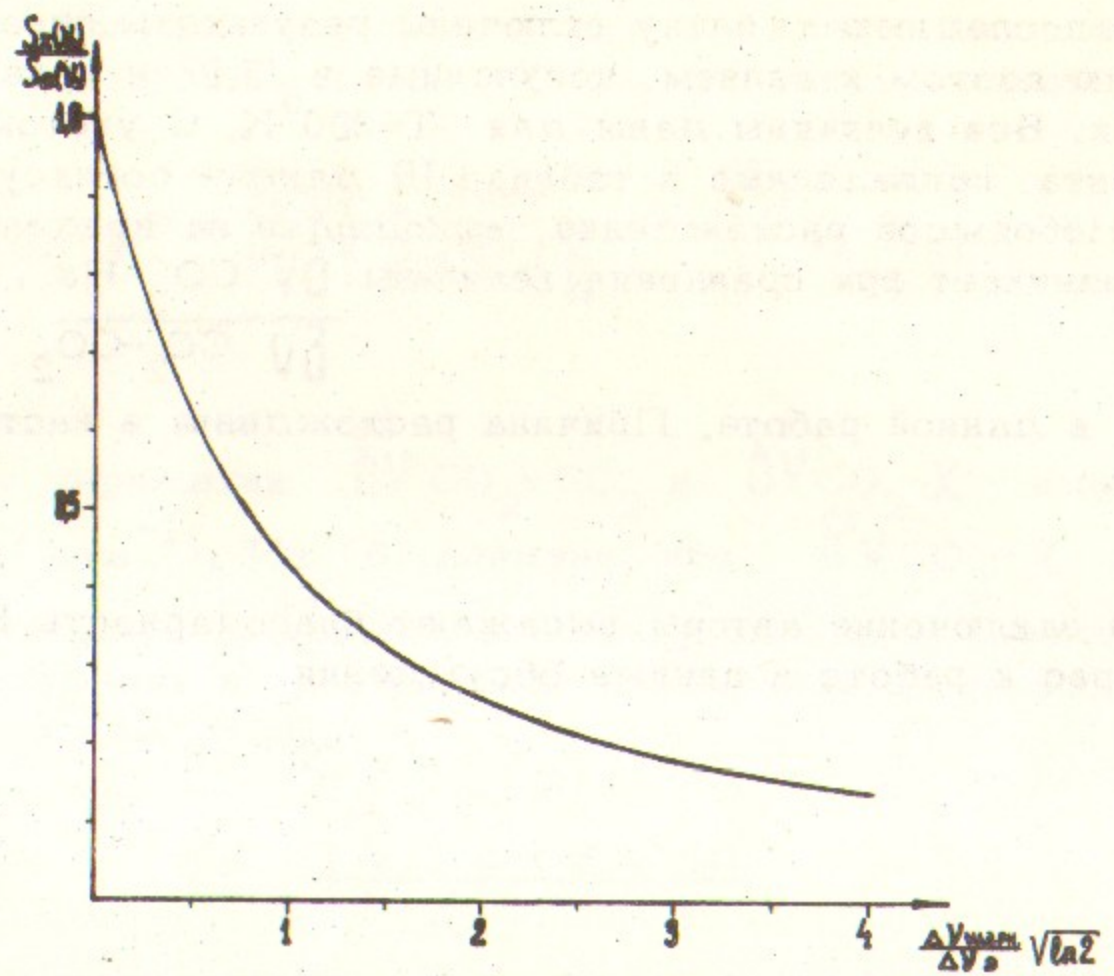


Рис. 1.

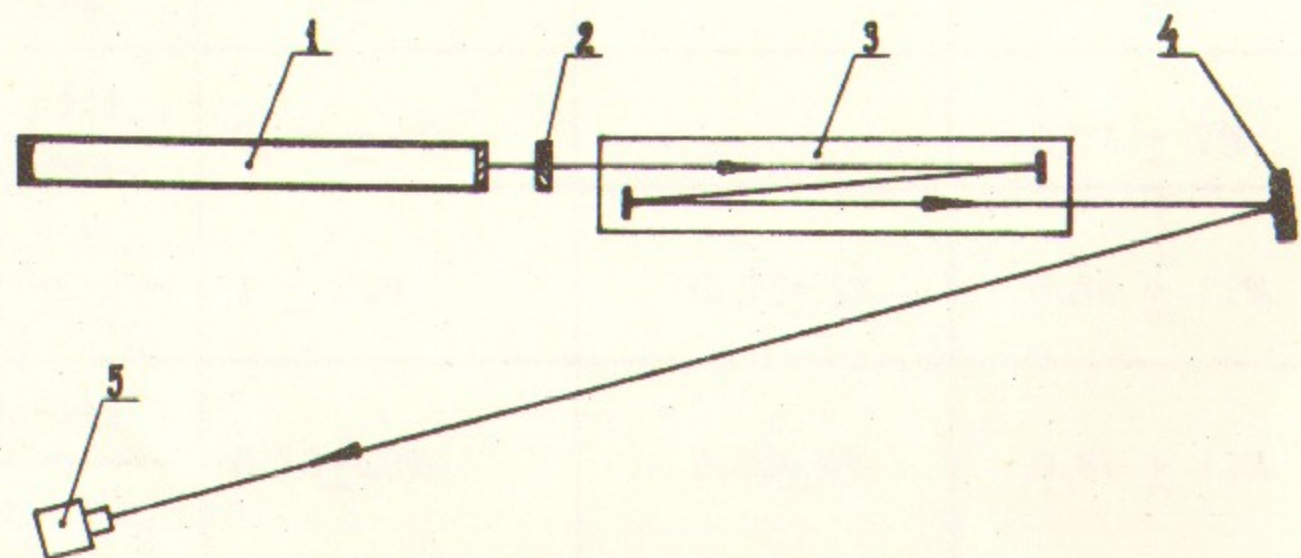


Рис. 2.

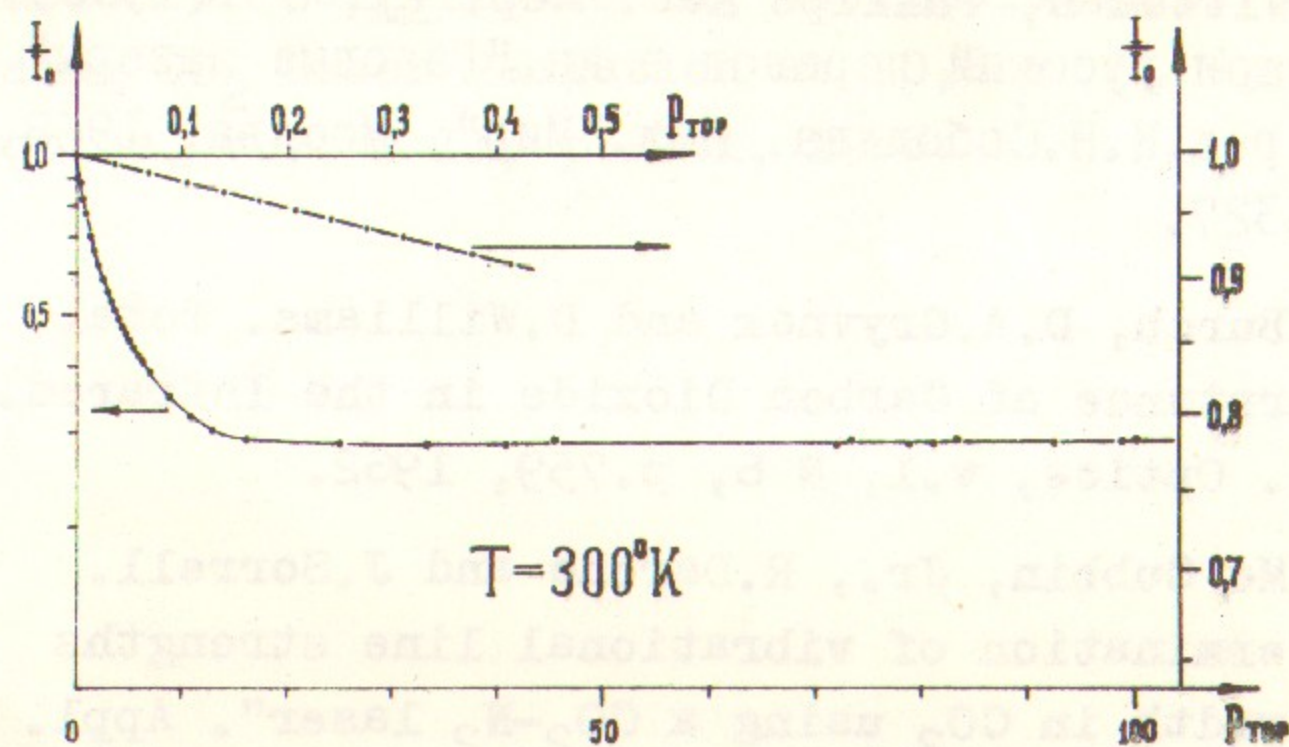


Рис. 3.

## Л и т е р а т у р а

1. Che Jen Chen. Pumping mechanism of CO<sub>2</sub> laser and formation rate of CO<sub>2</sub> from CO and O. J. Appl. Phys. 1971, 42, N 3, 1016-1020.
2. W.J.Wittegan, Philips Res. Rep. 21, 73 (1966). Имеется русский перевод в кн. "Газовые лазеры" под ред. Н.Н.Соболева. Изд. "Мир", Москва, 1968, стр.327.
3. D.E.Burch, D.A.Gryvnak and D.Williams. Total Absorptance of Carbon Dioxide in the Infrared. Appl. Optics, v.1, N 6, p.759, 1962.
4. T.K.Mc Cubbin, Jr., R.Darone and J.Sorrell. "Determination of vibrational line strengths and width in CO<sub>2</sub> using a CO<sub>2</sub>-N<sub>2</sub> laser". Appl. Phys. Lett. v.8, N 5, p.118, 1 March 1966.
5. C.Rossetti et P.Barchewitz. Spectroscopie moleculaire avec source laser. Determination du moment de transition vibrationnel et des largeurs des raies de vibration-rotation de la transition  $V_3 - V_1$  de CO<sub>2</sub>. C.r.Acad.Sc.Paris, t.262 (2 mai 1966), serie B, 1199.
6. S.R.Drayson and C.Young. Band Strength and Line Half-width of the 10,4  $\mu$  CO<sub>2</sub> Band. J.Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer., v.7, p.993, 1967.

7. E.T.Gerry and D.A.Leonard. "Measurement of 10,6  $\mu$  CO<sub>2</sub> Laser Transition Probability and Optical Broadening Cross Sections". Appl. Phys. Lett., v.8, N 9, p.227, 1 May 1966.
8. R.R.Patty, E.R.Manring and J.A.Gardner. Determination of Self-Broadening Coefficients of CO<sub>2</sub> using CO<sub>2</sub> Laser Radiation at 10,6  $\mu$ . Appl. Optics, v.7, N 11, p.2241, 1968.



Ответственный за выпуск Э.П.Кругляков

Подписано к печати 6.5.72 МН 10278

Усл. 0,5 печ.л., тираж 250 экз. БЕСПЛАТНО.

Заказ № 36 . ПРЕПРИНТ.

Отпечатано на ротапринте в ИЯФ СО АН СССР, вг.