

Многочастотное лазерное зондирование содержащих СО газовых сред, возбужденных в импульсном разряде

А.А.Ионин, Ю.М.Климачев, А.Ю.Козлов, А.А.Котков,
О.А.Рулев, Л.В.Селезнев, Д.В.Синицын

Разработана методика многочастотного лазерного зондирования, которая может быть применена для диагностики температуры и населенности колебательных уровней в газовых смесях, содержащих колебательно-возбужденные молекулы СО. Методика апробирована при изучении временной динамики температуры газа и населенности колебательных уровней молекулы СО в газовых смесях, возбуждаемых импульсным разрядом. Показано, что ее использование позволяет уменьшить погрешность восстановления температуры газа до 3%. Обнаружено, что в смеси СО–О₂ населенность нижних колебательных уровней молекулы СО может в несколько раз превышать населенность уровней в лазерных смесях СО–Не и СО–N₂.

Ключевые слова: колебательный обмен, колебательная функция распределения, несамостоятельный разряд, активная среда, окись углерода, СО-лазер.

1. Введение

В плазме газового разряда происходит заселение колебательных уровней v молекул N₂, O₂, СО и др. Такие процессы используются для накачки активной среды газоразрядных СО-, СО₂- и других молекулярных лазеров. Обмен энергией между молекулами приводит к формированию платообразной колебательной функции распределения (КФР) [1–3], причем температура газа значительно влияет на скорость неравновесных кинетических процессов, происходящих в среде. Поэтому для изучения нестационарных кинетических процессов требуется развить методы измерения температуры газа и населенности колебательных уровней. В [4–6] с этой целью разрабатывалась методика многочастотного лазерного зондирования активной среды непрерывного лазерного усилителя на СО. Методика основана на том, что величина коэффициента усиления слабого сигнала (КУСС) на колебательно-вращательном переходе молекул связана с температурой газа T и с населенностью колебательных уровней – верхнего (N_{v+1}) и нижнего (N_v) [7]. Эти величины могут быть рассчитаны (восстановлены) при анализе результатов измерения поглощения или усиления излучения на нескольких ($m > 2$) колебательно-вращательных переходах молекул. Процедура восстановления представляет собой поиск такого набора параметров (T , N_v и N_{v+1}), при котором расчетные значения КУСС g_{vJ} наилучшим образом описывают усиление/поглощение G_{vJ} , измеренное для вращательных компонент J колебательного перехода $v + 1 \rightarrow v$. Поэтому чем точнее будут измерены значения КУСС G_{vJ} , тем точнее будут восстановлены искомые параметры. Отметим, что при этом

восстанавливается вращательная температура, но для молекулярных газов равенство вращательной и поступательной температур устанавливается за время нескольких столкновений [2] (при нормальных условиях время RT-релаксации $\tau_{RT} \sim 10^{-9}$ с).

В работах [8, 9] предпринималась попытка восстановить температуру в активной среде импульсного лазерного усилителя на СО по результатам измерения КУСС на трех ($m = 3$) вращательных переходах одной колебательной полосы, причем относительная погрешность δG измерения КУСС по отношению к максимальному измеренному значению составляла 9%–15% [9]. Однако в работе [6] было показано, что при $m = 3$ типичная точность измерения КУСС ($\delta G = 10\%$) приводит к большой ($\delta T > 60\%$) относительной погрешности восстановления температуры газа (например, при $T = 330$ К абсолютная погрешность $\Delta T > 200$ К [6]). Для уменьшения относительной погрешности (например, до $\delta T \sim 8\%$ при $m = 3$) требуются более точные измерения КУСС ($\delta G < 1\%$ [6]).

В работах [4–6] был избран иной путь повышения точности восстановления температуры – увеличение количества зондируемых линий m , поскольку анализ, проведенный в работах [4, 5], указывал на то, что при $m = 10$ и $\delta G = 10\%$ погрешность восстановления температуры ΔT может быть уменьшена до 1 К. В работах [5, 6] для зондирования активной среды непрерывного лазерного усилителя на СО низкого давления, который накачивался разрядом постоянного тока, использовалось несколько десятков ($m \approx 50$) линий, но погрешность восстановления температуры была велика ($\Delta T = 23$ К). Сами авторы отмечают, что «точность измерения показателей усиления, по-видимому, была недостаточной» [6]. Кроме того, для расчета КУСС требуется довольно точная идентификация зондируемых колебательно-вращательных переходов $v + 1 \rightarrow vP(J)$. Проблема в том, что в пределах спектральной ширины зондирующего излучения могут находиться контуры нескольких спектральных линий, которые соответствуют различным колеба-

А.А. Ионин, Ю.М. Климачев, А.Ю. Козлов, А.А. Котков, О.А. Рулев, Л.В. Селезнев, Д.В. Синицын. Физический институт им. П.Н. Лебедева РАН, Россия, 119991 Москва, Ленинский просп., 53; e-mail: aion@sci.lebedev.ru

Поступила в редакцию 28 марта 2006 г., после доработки – 22 сентября 2006 г.

тельно-вращательным переходам молекул. Для решения этой проблемы в работе [6] варьировались квантовые числа ν и J , а затем применялся весьма неопределенный критерий оценки, основанный на том, какие значения получаются при обработке результатов измерений – «разумные» или «нефизичные». Однако даже при точной идентификации линий «недостаточная» точность измерения КУСС может приводить к некорректным результатам (например, к отрицательным значениям населенности и температуры). Таким образом, развитие методики многочастотного лазерного зондирования требует решения двух задач – повышения точности измерения КУСС и достоверной идентификации зондируемых переходов.

В настоящей работе с целью развития методов диагностики температуры и населенности колебательных уровней в молекулярных газах решались обе указанные задачи. Кроме того, для условий импульсной накачки применение метода многочастотного лазерного зондирования потребовало модификации процедуры обработки экспериментальных данных. Разработанная методика была апробирована при исследовании временной динамики температуры газа и населенности колебательных уровней в содержащих окись углерода смесях ($\text{CO}-\text{He}$, $\text{CO}-\text{N}_2$ и $\text{CO}-\text{O}_2$), накачиваемых импульсным разрядом.

2. Методика экспериментов и обработки данных

В экспериментах временная динамика КУСС $G_{\nu J}(t)$ измерялась на колебательно-вращательных переходах молекулы окиси углерода. Оптическая схема экспериментов представлена на рис.1. Смесь газов, содержащая молекулы CO , возбуждалась импульсным электроионизационным (ЭИ) разрядом в разрядной камере лазерного усилителя 1 с криогенным охлаждением [10]. В качестве зондирующего лазера 2 применялся непрерывный перестраиваемый CO -лазер низкого давления с накачкой разрядом постоянного тока [10]. Для измерения спектральных характеристик зондирующего излучения часть лазерного пучка отводилась светоделительной пластиной 3 на спектрометр 4 (ИКС-31). Детекторы 5 и 6 ($\text{Hg}-\text{Cd}-\text{Zn}-\text{Te}$ -фотодетекторы РЕМ-L-3) использовались для регистрации временных характеристик излучения, падающего и прошедшего через исследуемую среду. Сферические зеркала 7 фокусировали излучение на входную щель спектрометра и приёмные площадки детекторов. Сиг-

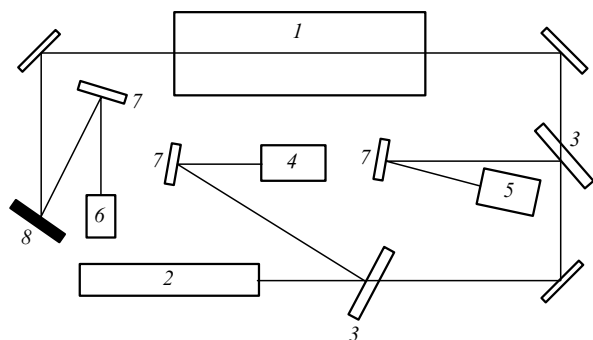


Рис.1. Оптическая схема экспериментов: 1 – лазерный усилитель; 2 – зондирующий лазер; 3 – светоделительные пластины; 4 – инфракрасный спектрометр; 5, 6 – фотодетекторы; 7 – сферические зеркала; 8 – дифракционная решетка.

налы, поступающие с детекторов, регистрировались осциллографом Tektronix TDS1012. Отражательная дифракционная решетка 8 (150 штр./мм) применялась для выделения зондирующего излучения из спектра спонтанного излучения.

Для достоверной идентификации зондируемых линий проводился их тщательный отбор. Каждая выбранная спектральная линия не должна была перекрываться с линиями других переходов (включая изотопы и газы, входящие в состав газовой смеси), тех, которые обладают заметным поглощением или усилением на частоте зондирующего излучения. В качестве критерия отбора линий выбиралось условие, что частотная отстройка центра зондируемой линии $\Delta\nu_{\nu J}$ от центра ближайшей (мешающей) линии во много раз превышает ширину линии как зондирующего излучения, так и зондируемых линий, а также учитывалась точность измерения частоты излучения. В работе [6] частота излучения зондирующего CO -лазера измерялась с «недостаточной» ($\sim 2 \text{ см}^{-1}$) точностью, поскольку из-за перекрытия колебательных полос спектральные линии CO расположены настолько тесно, что среди сотен линий $\nu + 1 \rightarrow \nu P(J)$ молекулы $^{12}\text{C}^{16}\text{O}$ ни одна не удовлетворяла критерию $\Delta\nu_{\nu J} > 2 \text{ см}^{-1}$.

В условиях наших экспериментов ширина зондируемых линий на половине высоты не превышала 0.02 см^{-1} , а погрешность измерения частоты лазерного излучения $\Delta\nu$ составляла $\sim 0.2 \text{ см}^{-1}$ ($\Delta\lambda = 0.8 \text{ нм}$). Линии зондирования выбирались на основе анализа колебательно-вращательного спектра [11] для природной смеси изотопов окиси углерода (наиболее распространенный изотоп $^{12}\text{C}^{16}\text{O}$ имеет относительную концентрацию $y_1 \approx 0.987$, а изотоп $^{13}\text{C}^{16}\text{O} - y_2 \approx 0.011$). В качестве критерия отбора линий было выбрано условие $\Delta\nu_{\nu J} > 0.2(y_n/y_1) \text{ см}^{-1}$, учитывающее относительную концентрацию y_n ($n = 1, 2, \dots$) того изотопа, которому принадлежит мешающая линия. Из 700 линий, соответствующих лазерным переходам $\nu + 1 \rightarrow \nu P(J)$ молекулы $^{12}\text{C}^{16}\text{O}$, где $\nu = 2 - 36$ и $J = 4 - 23$, были выявлены 250 подходящих линий (7 ± 3 линии в колебательной полосе). При более жестком критерии отбора ($\Delta\nu_{\nu J} > 0.3(y_n/y_1) \text{ см}^{-1}$) число подходящих линий уменьшалось почти в два раза (до 130 линий).

Затем спектральные характеристики набора из 250 линий сравнивались со спектральными характеристиками зондирующего CO -лазера (~ 200 спектральных линий, $\nu = 5 - 31$). Это сравнение показало, что число линий в одной колебательной полосе, подходящих для восстановления температуры газа и населенности уровней, редко больше трех. Однако для восстановления искомых параметров могут использоваться линии, принадлежащие разным колебательным полосам. В результате проведенного анализа было найдено несколько наборов по десять спектральных линий, принадлежащих трём последовательным колебательным полосам.

Для измерения величины КУСС с хорошей точностью ($\delta G < 10\%$) интенсивность зондирующего излучения должна быть достаточно велика (в наших экспериментах $10^{-1} - 1 \text{ Вт}\cdot\text{см}^{-2}$), но меньше интенсивности насыщения усиления излучения I_s в исследуемой среде (для переходов молекулы CO $I_s \sim 10^2 \text{ Вт}\cdot\text{см}^{-2}$ [12]). Применение для зондирования перестраиваемого по частоте лазера требует, чтобы диапазон перестройки частоты излучения в каждой колебательной полосе охватывал те переходы, которые обладают максимальными абсолютными значениями КУСС в исследуемой среде. В наших экс-

периментах для согласования спектральных характеристик зондирующего СО-лазера и исследуемой среды лазерная кювета зондирующего лазера охлаждалась жидким азотом. При этом спектральный диапазон перестройки частоты зондирующего излучения позволял охватить переходы с номером J от 6 до 18, причем в интервал $J = 6 - 10$ попадали переходы, которые обладали максимальными значениями КУСС ($\sim 1 \text{ м}^{-1}$) в исследуемой среде. Однако при большом усилении активной среды возникает необходимость выделять зондирующее излучение из широкого спектра спонтанного излучения. В экспериментах (см. рис. 1) для этого применялась схема монохроматора с отражательной дифракционной решеткой δ .

Благодаря мерам по отбору зондируемых линий и измерению спектра излучения зондирующего лазера, каждая из выбранных линий была точно идентифицирована. Величина КУСС $G_{vJ}(t)$ для каждой линии измерялась несколько раз (3–4 серии по 3 измерения в каждой), чтобы устранить случайные погрешности и найти абсолютную погрешность измерения $\sigma_{vJ}(t)$. Для исследуемых лазерных смесей СО– N_2 и СО– He абсолютная погрешность измерения σ_{vJ} составляла $\sim 0.03 \text{ м}^{-1}$, а относительная погрешность измерения δG была равна $\sim 2\%$.

Температура газа $T(t)$ и населенность $N(t)$ колебательных уровней были восстановлены посредством минимизации целевой функции:

$$F(T, N) = \sum_{v,J} \left[\frac{g_{vJ}(T, N_v, N_{v+1}) - G_{vJ}(t)}{\sigma_{vJ}(t)} \right]^2, \quad (1)$$

где N – двухрядная матрица (N_v, N_{v+1}) населенности колебательных уровней; g_{vJ} – рассчитываемое значение КУСС; $G_{vJ}(t)$ – величина КУСС, измеренная в момент времени t ($t = 0$ – момент начала импульса разряда). Отметим, что в работах [4–6] фактор $\sigma_{vJ}(t)$ в целевой функции не учитывался, и тем самым предполагалось, что погрешности измерения КУСС одинаковы, тогда как в действительности они для разных линий зондирования различались в несколько раз (см. [6]).

Процедура минимизации функции (1), предложенная в [4, 5], заключалась в том, что сначала по населенности $N_0(T_1)$ при некотором стартовом значении температуры газа T_1 находилась минимум целевой функции, а после этого при найденных значениях населенности определялся минимум функции $F(T, N_0(T_1))$ по температуре газа T . Однако такая упрощенная процедура поиска минимума функции (1) может давать неверные результаты, поскольку даже при малом изменении температуры T могут сильно изменяться значения населенности $N_0(T_1)$. В связи с этим результат восстановления температуры зависит от выбора стартового значения T_1 . Описанная процедура может применяться только в условиях, при которых температура газа измеряется другими методами и почти не меняется ($T(t) \approx T_1$), например при непрерывной накачке газа разрядом постоянного тока. Однако для условий импульсной накачки, при которой температура газа изменяется значительно, потребовалось модифицировать процедуру восстановления температуры газа.

Поскольку коэффициент усиления g_{vJ} зависит от населенности колебательных уровней N_v и N_{v+1} линейным образом, матрица населенности $N_0(T)$, обеспечивающая минимум функции (1), рассчитывается путем решения

системы линейных уравнений (для различных значений v):

$$\left. \frac{\partial F}{\partial N_v} \right|_T = 0, \quad \left. \frac{\partial F}{\partial N_{v+1}} \right|_T = 0. \quad (2)$$

Решение системы уравнений (2) при компьютерном расчете можно представить в виде подпрограммы-функции, а процедура поиска минимума функции (1) сводится при этом к нахождению минимума функции одной переменной $F(T, N_0(T_1))$. Для решения такой задачи разработаны разнообразные методы спуска (в наших расчетах использовался метод Левенберга – Маркара [13]). Метод сингулярного разложения, который применялся в работах [4–6] для нахождения $N_0(T_1)$, обладает более высокой устойчивостью к возмущению исходных данных, но платой за устойчивость решения может стать большая погрешность результатов расчета.

Для устранения проблем, возникающих при минимизации функции (1), таких как отсутствие или избыток решений, а также решения с отрицательными значениями температуры и населенности, в работе [5] предлагалось ограничить область значений искомых параметров (например, $T > 0, N_v > N_{v+1} > 0$) и найти условный минимум функции (1). При обработке наших экспериментальных данных применялся другой подход. Некорректные решения возникали при обработке данных с большой относительной погрешностью (например, при малых значениях КУСС в начале и в конце интервала времени существования усиления (ВСУ)). Чтобы выявить такие решения, вычислялось несколько (от 15 до 25) значений температуры для моделируемых случайных значений КУСС, имевших нормальное распределение вблизи среднего измеренного значения $G_{vJ}(t)$ со стандартным отклонением, равным $\sigma_{vJ}(t)$. Статистический анализ результатов расчета с моделируемыми исходными данными давал среднее значение искомых параметров и стандартное отклонение, которое характеризовало чувствительность результатов расчета к возмущению исходных данных. Отбраковывались те результаты расчета, для которых стандартное отклонение многократно (в 5 раз и более) превышало среднее значение отклонения в течение ВСУ.

В зависимости от параметров исследуемой среды (давление, плотность и состав газовой смеси) метод многочастотного лазерного зондирования позволяет восстанавливать либо абсолютную населенность колебательных уровней N_v , либо относительную населенность $n_v = N_v/N$ (N – концентрация активных молекул). В условиях, при которых в активной среде преобладает доплеровское уширение спектральных линий, восстанавливается абсолютная населенность N_v . При ударном уширении ширины линий изменяется почти пропорционально концентрации частиц газа, поэтому восстанавливается относительная населенность n_v , причем эта величина менее чувствительна, чем N_v , к изменению плотности газа, например при газодинамических возмущениях среды. В условиях проведенных нами экспериментов преобладало ударное уширение линий, поэтому восстанавливалась относительная населенность уровней n_v .

3. Экспериментальные результаты

На рис. 2 представлена временная динамика температуры газа $T(t)$ для лазерных смесей СО:He = 1:4 и

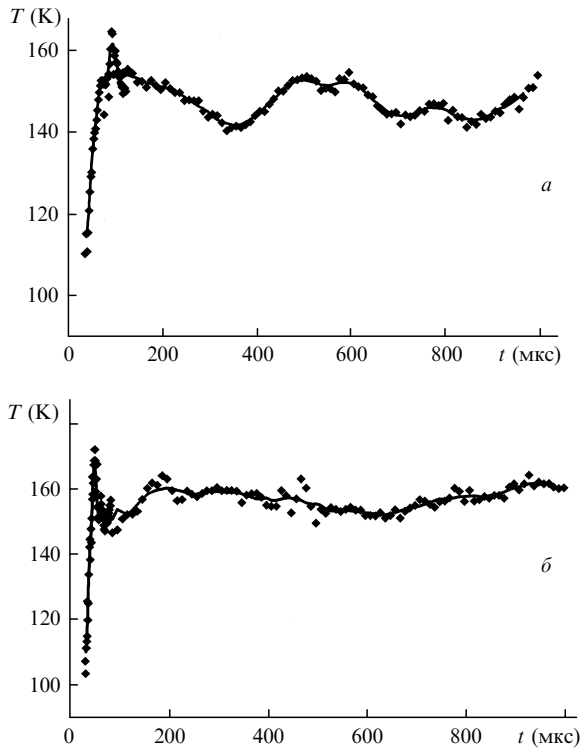


Рис.2. Временная динамика температуры для газовых смесей CO:He = 1:4 (а) и CO:N₂ = 1:9 (б) при удельном энергокладе $Q = 180$ Дж·л⁻¹·Амага⁻¹ и средней концентрации газа $N_g = 0.12$ Амага.

CO:N₂ = 1:9 при средней концентрации газа в лазерном усилителе $N_g = 0.12$ Амага. Здесь Амага – единица концентрации газа, численно равная количеству молей газа в молярном объеме (22.4 л). Измерение температуры газа, выполненное в исследуемой области (без разряда) с помощью термопар, показало, что начальная температура газа T_g составляет $\sim 108 \pm 3$ К для гелиевой смеси и $\sim 117 \pm 4$ К для азотной смеси, причем погрешность этих измерений обусловлена неоднородностью распределения температуры газа в охлаждаемой разрядной камере. Применение метода многочастотного ($m = 10$, линии $13 \rightarrow 12P$ ($J = 9, 13, 15$), $14 \rightarrow 13P$ ($J = 8, 10, 13, 14$), $15 \rightarrow 14P$ ($J = 10, 14, 16$)) лазерного зондирования позволило измерить температуру лазерной среды с точностью $\Delta T = 5$ К (среднеквадратическая погрешность), которая сравнима с неравномерностью распределения начальной температуры газа T_g . После импульса накачки (длительностью 40 мкс) температура газа увеличивалась за первые 100 мкс, но затем она мало изменялась в течение длительного времени (до 1000 мкс). Температура газа возросла до 148 ± 5 К для гелиевой смеси (рис.2,а) и до 157 ± 5 К для азотной смеси (рис.2,б), т. е. после ЭИ разряда она увеличивалась на одинаковую величину (40 ± 9 К). Удельная теплоемкость исследуемых смесей при постоянном объеме равна 0.64 Дж·л⁻¹·Амага⁻¹·К⁻¹ для смеси CO:He = 1:4 и 0.94 Дж·л⁻¹·Амага⁻¹·К⁻¹ для смеси CO:N₂ = 1:9. Локальное (в области зондирования) значение удельного энергоклада $Q \approx 180$ Дж·л⁻¹·Амага⁻¹ было найдено в работе [14] путем сопоставления экспериментальной и расчетной динамик усиления. При таком значении удельного энергоклада доля энергии разряда, идущая на «быстрый» нагрев газа, составляла $14\% \pm 4\%$ для смеси CO:He = 1:4 и $20\% \pm 5\%$ для смеси CO:N₂ = 1:9.

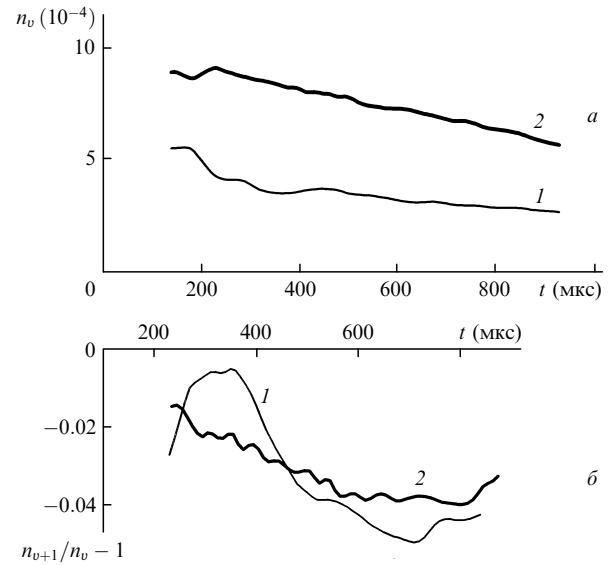


Рис.3. Временная динамика относительной населенности $n_v(t)$ колебательного уровня $v = 12$ (а) и величины $n_{v+1}/n_v - 1$ при $v = 12$ (б) в газовых смесях CO:He = 1:4 (1) и CO:N₂ = 1:9 (2); остальные параметры указаны в подписи к рис.2.

На рис.3,а представлена временная динамика относительной населенности $n_v(t)$ колебательного уровня $v = 12$ для смесей CO–He и CO–N₂. На протяжении ВСУ точность восстановления величины n_v составляла 8%–15%. При одинаковой энергии накачки величина n_v в азотной смеси превышала в среднем n_v в гелиевой смеси в 2.4 раза. Напомним, что здесь речь идет только о населенности колебательных уровней, а усиление излучения происходит при частичной инверсии на колебательно-вращательном переходе. Важную роль при этом играет наклон функции распределения f_v , который можно оценить с помощью величины $n_{v+1}/n_v - 1 \approx (f_v)^{-1} df_v/dv$. Изменение $n_{v+1}/n_v - 1$ с течением времени представлено на рис.3,б для обеих смесей. Отметим, что в азотной смеси наклон КФР изменяется медленнее, чем в гелиевой, поскольку часть колебательной энергии, запасенной молекулами N₂, постепенно передается молекулам CO.

В работах [15, 16] было показано, что добавка окиси углерода стабилизирует разряд в газовых смесях с большим содержанием кислорода и позволяет достигать высоких энергокладов. Повышение энергоклада в таких смесях создает предпосылки для возбуждения синглетного кислорода (O_2 в состоянии $a^1\Delta_g$) с высоким выходом. Кроме того, в таких смесях была осуществлена генерация лазерного излучения на переходах молекулы CO [16, 17]. Для диагностики температуры газа и населенности колебательных уровней молекулы были проведены измерения динамики КУСС в смеси CO:O₂ = 1:19 для линий в полосе $10 \rightarrow 9P$ ($J = 7, 8, 10-16$). При выборе этих линий ($m = 9$) применялся ослабленный критерий отбора ($\Delta v_{vJ} > 0.1(y_n/y_1) \text{ см}^{-1}$) и пренебрегалось влиянием двух мешающих линий с малым поглощением излучения. Измерения проводились при небольшом значении локального энергоклада ($Q = 90$ Дж·л⁻¹·Амага⁻¹), при котором газодинамические возмущения газа в смеси CO–O₂ были слабыми. Температура газа в кислородной смеси (рис.4) возросла на 45 ± 12 К (начальная температура газа $T_g \approx 120$ К). Для сравнения на рис.4 приведена динамика температуры газа в гелиевой смеси CO:He = 1:4, в которой температура возросла при-

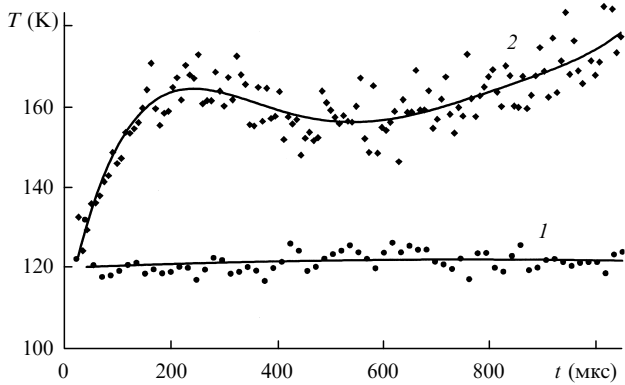


Рис.4. Временная динамика температуры газа в смесях CO:He = 1:4 ($N_g = 0.12$ Амага) (1) и CO:O₂ = 1:19 ($N_g = 0.06$ Амага) (2); $Q = 90$ Дж·л⁻¹·Амага⁻¹.

мерно на 10 К ($T_g \approx 110$ К). Таким образом, ЭИ разряд в кислородной смеси характеризуется более сильным нагревом активной среды, чем в гелиевой смеси. Часть энергии, израсходованная на прямой нагрев газа в ЭИ разряде, для кислородной смеси с 5%-ной добавкой окиси углерода составляла $35\% \pm 10\%$, что достаточно близко к результатам, полученным в работе [18] для чистого кислорода ($40\% \pm 10\%$). Изменение концентрации и температуры газа при его расширении в балластный объем после разряда проявилось в виде уменьшения температуры газа для кислородной смеси (рис.4) в интервале 200–500 мкс.

Известно (см., напр., [19–21]), что добавление малого количества кислорода в активную среду СО-лазера низкого давления с накачкой самостоятельным разрядом улучшает выходные характеристики прокачиваемого СО-лазера (в отличие от отпаянного лазера, работающего без обновления газовой смеси; см. [22], с. 53). В работе [23] было продемонстрировано, что в условиях самостоятельного разряда населенность колебательных уровней молекулы СО может увеличиваться в 5–10 раз при добавлении в газовую смесь CO:He = 1:4 кислорода в количестве, определяемом соотношением концентраций молекул $[O_2] = 0.25 [CO]$. Анализ результатов наших экспериментов (при импульсном несамостоятельном разряде) показал, что относительная населенность колебательных уровней $n_v(t)$ (рис.5,а) в кислородной смеси CO:O₂ = 1:19 также была более высокой, чем в гелиевой смеси CO:He = 1:4. В среднем в течение ВСУ относительная населенность колебательного уровня $v = 9$ в кислородной смеси в пятнадцать раз превышала величину n_v в гелиевой смеси. Ослабление критерия отбора линий не увеличило погрешность восстановления населенности колебательных уровней. Более того, некоторое повышение точности ($\delta n_v = 7\% - 12\%$) связано с уменьшением количества неизвестных величин, поскольку зондируемые линии принадлежат одному колебательному переходу, а не трем. На рис.5,б представлена динамика изменения величины $n_{v+1}/n_v - 1$ для двух смесей. В кислородной смеси наклон КФР в два раза больше, чем в гелиевой, по-видимому, из-за оттока колебательной энергии от молекул СО к молекулам O₂ в процессе межмолекулярного колебательного обмена $CO(v) + O_2(0) \rightarrow CO(v-1) + O_2(1)$. При таком обмене молекулы СО переходят на один колебательный уровень вниз, $v \rightarrow v-1$, и накапливаются на колебательных уровнях, расположенных ниже тех, которые эффективно участвуют в меж-

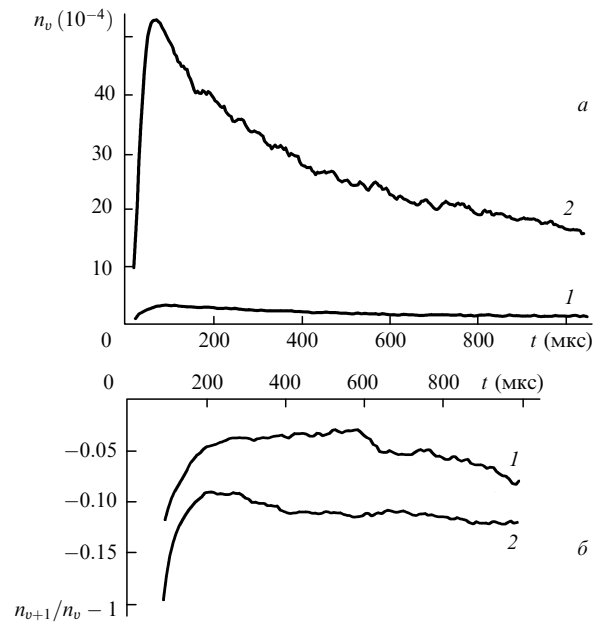


Рис.5. Временная динамика относительной населенности $n_v(t)$ колебательного уровня $v = 9$ (а) и величины $n_{v+1}/n_v - 1$ при $v = 9$ (б) в газовых смесях CO:He = 1:4 (1) и CO:O₂ = 1:19 (2); остальные параметры указаны в подписи к рис.4.

молекулярном обмене (в работе [17] при $v > 14$ излучение не усиливалось, а поглощалось, $G_{vJ}(t) \leq 0$).

Увеличение начальной температуры газа от 110–120 К до комнатной температуры ($T_g \approx 290$ К) приводило к тому, что усиление лазерного излучения в активной среде уменьшалось и сменялось поглощением (рис.6,а). На рис.6,б представлена динамика температуры газа в смеси CO:O₂ = 1:19, восстановленная по результатам измерения поглощения излучения зондирующего СО-лазера

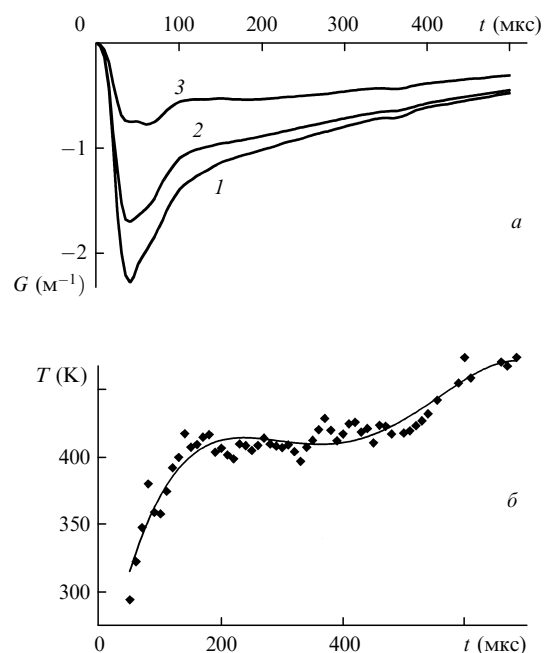


Рис.6. Поглощение зондирующего излучения на переходах полосы $9 \rightarrow 8P(J)$ при $J = 9$ (1), 11 (2) и 15 (3) (а) и временная динамика температуры газовой смеси CO:O₂ = 1:19; $P_0 = 30$ Тор ($N_g \approx 0.04$ Амага), $T_0 \approx 290$ К; $Q = 250$ Дж·л⁻¹·Амага⁻¹ (б).

на десяти спектральных линиях $9 \rightarrow 8P$ ($J = 9, 11, 15$); $10 \rightarrow 9P$ ($J = 10, 11, 13, 15$) и $11 \rightarrow 10P$ ($J = 10, 12, 16$). При энерговкладе $Q = 250 \text{ Дж} \cdot \text{л}^{-1} \cdot \text{Амага}^{-1}$ температура газа возрастала от начального значения $T_g \approx 290 \text{ К}$ до $415 \pm 20 \text{ К}$ за первые 200 мкс. Затем на протяжении $\sim 500 \text{ мкс}$ температура изменялась мало, по-видимому, в результате расширения нагретого газа. После этого температура газа снова продолжала увеличиваться из-за релаксации колебательной энергии, запасенной молекулами.

При измерении поглощения была обнаружена систематическая погрешность, связанная с окислением молекул окиси углерода ($O_2 + e \rightarrow O + O^-$, $CO + O^- \rightarrow CO_2 + e$). В результате таких реакций в составе газовой смеси увеличивалось количество молекул углекислого газа. Для измерения концентрации молекул CO_2 применялся фурье-спектрометр АФ-3, изготовленный в НТЦ Уникального приборостроения РАН (Москва). Исследуемая газовая смесь напускалась в газовую кювету и проводилось измерение коэффициента поглощения излучения в интервале длин волн 4.2–4.4 мкм. После тридцати импульсов разряда парциальное давление CO_2 достигало 0.2 Тор при начальном давлении окиси углерода 1.5 Тор. Увеличение количества молекул CO_2 в составе газовой смеси $CO-O_2$ приводило к изменению временной динамики поглощения излучения $G_{\nu J}(t)$ из-за повышения скорости релаксации колебательной энергии. Для устранения этой систематической погрешности анализировалось изменение $G_{\nu J}(t)$ в зависимости от номера импульса разряда и была найдена корректирующая функция. Затем результаты измерений корректировались, в результате чего все экспериментальные данные по поглощению излучения были приведены к первому (после напуска газа) импульсу разряда. Именно по этим скорректированным данным (рис.6,а) проводилась статистическая обработка и восстановление температуры газа.

4. Заключение

Проведенное исследование показало, что метод многочастотного лазерного зондирования может быть использован для измерения временной динамики температуры и населенности колебательных уровней в молекулярных газах, содержащих окись углерода. В условиях перекрытия колебательных полос спектральные линии, соответствующие колебательно-вращательным переходам молекулы CO , располагаются настолько плотно, что возникает проблема выбора и идентификации зондируемых переходов. Для решения этой проблемы проводился анализ взаимного расположения спектральных линий молекулы CO . При выборе линий использовался жесткий критерий отбора, который учитывал разрешающую способность спектрометра, применявшегося для измерения частоты зондирующего излучения. Благодаря таким мерам каждая из выбранных линий была точно идентифицирована. Кроме того, для условий импульсной накачки газа потребовалось модифицировать процедуру обработки экспериментальных данных. Разработанная методика была апробирована при изучении временной динамики температуры газа и населенности колебательных уровней в газовых смесях $CO-He$, $CO-N_2$ и $CO-O_2$, накачиваемых в плазме импульсного электроионизаци-

онного разряда. Относительная погрешность восстановления температуры газа составляла при этом 3%–5%. При анализе результатов этого исследования обнаружено, что в газовой смеси $CO:O_2 = 1:19$ на колебательном уровне $\nu = 9$ молекулы CO относительная населенность примерно в пятнадцать раз больше, чем в смеси $CO:He = 1:4$, по-видимому, из-за межмолекулярного колебательного обмена между молекулами окиси углерода и кислорода. Разработанная методика может быть использована для изучения термодинамических и кинетических процессов в газовых смесях, содержащих колебательно-возбужденные молекулы CO .

Авторы выражают признательность А.П.Напартовичу, А.К.Курносову, И.В.Кочетову за обсуждение полученных результатов, С.В.Ветошкину и Ю.В.Лобареву – за помощь, оказанную ими на различных стадиях данного исследования. Работа поддержана МНТЦ (проект № 2415-Р), РФФИ (грант № 05-02-17656), Программой поддержки молодежи учебно-научного комплекса ФИАН, а также Федеральным Агентством по науке (целевая финансовая поддержка развития приборной базы научных организаций).

1. Treanor C.E., Rich J.W., Rehm R.G. *J. Chem. Phys.*, **48** (4), 1798 (1968).
2. Гордиец Б.Ф., Осипов А.И., Шелепин Л.А. *Кинетические процессы в газах и молекулярные лазеры* (М.: Наука, 1980).
3. Billing G.D., Coletti C., Kurnosov A.K., Napartovich A.P. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, **36**, 1175 (2003).
4. Вязовецкий Н.М., Дидюков А.И., Кирко В.Ю. и др. *Препринт ФИАН № 221* (М., 1988).
5. Дидюков А.И., Кирко В.Ю., Кулагин Ю.А., Шелепин Л.А. *Препринт ФИАН № 109* (М., 1989).
6. Вязовецкий Н.М., Дидюков А.И., Кирко В.Ю. и др. *ЖПС*, **52** (4), 659 (1990).
7. Patel C.K.N. *Phys. Rev.*, **141**, 71 (1966).
8. Басов Н.Г., Казакевич В.С., Ковш И.Б., Микрюков А.Н. *Квантовая электроника*, **10**, 1049 (1983).
9. Казакевич В.С. *Канд. дисс.* (М., ФИАН, 1984).
10. Ветошкин С.В., Ионин А.А., Климачев Ю.М. *Препринт ФИАН № 13* (М., 2005); Vetoshkin S.V., Ionin A.A., Klimachev Yu.M., et al. *J. Russ. Laser Res.*, **27**, 33 (2006).
11. Guelachvili G., de Villeneuve D., Farrenq R., et al. *J. Molec. Spectrosc.*, **98**, 64 (1983).
12. Елкин Н.Н., Кочетов И.В., Курносов А.К., Напартович А.П. *Квантовая электроника*, **17** (3), 313 (1990).
13. Gill P.R., Murray W., Wright M.H., in *Practical Optimization* (London: Acad. Press, 1981, p. 136).
14. Ветошкин С.В., Ионин А.А., Климачев Ю.М. и др. *Препринт ФИАН № 27* (М., 2004).
15. Ionin A.A., Klimachev Yu.M., Kotkov A.A., et al. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **36**, 982 (2003).
16. Вагин Н.П., Ионин А.А., Климачев Ю.М. и др. *Квантовая электроника*, **34**, 865 (2004).
17. Ветошкин С.В., Ионин А.А., Климачев Ю.М. и др. *Квантовая электроника*, **37**, 111 (2007).
18. Лондер Я.И., Менахин Л.П., Ульянов К.Н. *ТВТ*, **19**, 720 (1981).
19. Bhaumik M.L., Lacina W.B., Mann M.M. *IEEE J. Quantum Electron.*, **8**, 150 (1972).
20. Волченков В.И., Егоров Н.П., Комаров В.Н. и др. *ЖТФ*, **46**, 2541 (1976).
21. Григорян Г.М., Дымшиц Б.М., Ионин Ю.З. *Квантовая электроника*, **16**, 1377 (1989).
22. Алейников В.С., Масычев В.И. *Лазеры на окиси углерода* (М.: Радио и связь, 1990).
23. De Benedictis S., Cramarossa F., d'Agostino R. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **18**, 413 (1985).