

**ЛАЗЕР НА ОКСИ УГЛЕРОДА. МЕХАНИЗМ ОБРАЗОВАНИЯ
ИНВЕРСНОЙ НАСЕЛЕННОСТИ *)****Н. Н. Соболев, В. В. Сокозиков****СОДЕРЖАНИЕ**

1. Общие замечания. Основные кинетические уравнения	191
2. Вероятности колебательных переходов в молекуле СО	193
а) Столкновительные колебательные переходы (193). б) Радиационные колебательные переходы (197). в) Возбуждение колебательных уровней СО и N ₂ электронным ударом (197).	
3. Колебательная релаксация системы ангармонических осцилляторов	199
4. Населенности колебательных уровней СО в активных средах СО-лазеров	201
а) СО-лазер при температуре жидкого азота (202). 1) Результаты расчетов населенностей (202). 2) Сравнение теории с экспериментом (204). б) СО-лазер при комнатной температуре (206). 1) Результаты расчетов населенностей (206). 2) Сравнение теории с экспериментом (208).	
5. Заключение	210
Цитированная литература	211

1. ОБЩИЕ ЗАМЕЧАНИЯ. ОСНОВНЫЕ КИНЕТИЧЕСКИЕ УРАВНЕНИЯ

Изложенная в работах ²⁻⁴ гипотеза о механизме образования инверсии в СО₂-лазерах была подтверждена в большом цикле работ, выполненных в физическом институте АН СССР (ФИАНе), а также в ряде других лабораторий, как отечественных, так и зарубежных. В настоящее время этот механизм является общепризнанным ^{5, 6}.

Механизм работы СО-лазера во многих отношениях близок к механизму действия СО₂-лазера. Вряд ли можно сомневаться в том, что накачка в СО-лазере осуществляется за счет непосредственного электронного возбуждения колебательных уровней СО и N₂ аналогично тому, как это имеет место в СО₂-лазере. Несомненно, что распределение молекул по колебательным уровням в СО-лазере определяется (так же как и в СО₂-лазере) главным образом колебательной релаксацией, т. е. процессами столкновений между тяжелыми частицами и прежде всего между молекулами СО.

Количественная трактовка задачи о населенности уровней СО₂-лазера была значительно облегчена благодаря использованию хорошо развитой теории релаксации гармонических осцилляторов ⁷. Известно, что при любом способе возбуждения системы гармонических осцилляторов резонансный обмен колебательными квантами (VV-релаксация) приводит к больцмановскому распределению с колебательной температурой, определяемой общим запасом колебательных квантов. Колебательно-поступательная (VT) релаксация вызывает только изменение колебательной температуры больцмановского распределения по колебательным уровням.

*) Статья является второй частью обзора по СО-лазерам, первая часть которого, посвященная результатам экспериментальных исследований, опубликована отдельно ¹.

Такое поведение системы гармонических осцилляторов связано с тем, что VV-релаксация происходит гораздо быстрее VT-релаксации. Эту модель можно было использовать для анализа работы CO₂-лазера, так как в процессе генерации участвовало только небольшое число нижних уровней трех типов колебаний молекулы CO₂, которые рассматривались как три гармонических осциллятора. Каждому из этих осцилляторов соответствовала своя колебательная температура. Указанный подход позволил избежать отыскания решений системы кинетических уравнений для населенностей отдельных уровней и рассматривать релаксационные уравнения для энергий каждого типа колебаний молекул CO₂.

Попытка рассмотреть активную среду СО-лазера как систему гармонических осцилляторов с больцмановским распределением, определяемым колебательной температурой, была предпринята в ФИАНе в 1969 г. Для возникновения генерации только на линиях Р-ветви молекулы СО реализация абсолютной колебательной инверсии не обязательна. При низкой вращательной температуре могла возникнуть частичная инверсия и в случае больцмановского распределения по колебательным уровням. Однако из факта существования генерации на высоких колебательных уровнях ($v > 5$) и отсутствия ее на низких уровнях следовало, что колебательная температура СО должна быть порядка 20 000—30 000 °К. Определенные при таких температурах коэффициенты усиления оказались на один-два порядка выше экспериментальных. Это существенное расхождение, а также возможность генерации на большом числе высокорасположенных уровней привели к мысли о необходимости привлечения для объяснения механизма работы СО-лазера модели релаксирующей системы ангармонических осцилляторов⁸ и к необходимости решения системы кинетических уравнений для населенностей отдельных уровней. Изменение населенностей колебательных уровней молекул СО в тлеющем разряде можно описать следующей системой кинетических уравнений:

$$\begin{aligned} \frac{dN_v}{dt} = & K_{v+1, v} N_{v+1} N - (K_{v, v-1} + K_{v, v+1}) N_v N + K_{v-1, v} N_{v-1} N + \\ & + \left\{ \left(\sum_{v'} K_{v+1, v}^{v'-1, v'} N_{v'-1} \right) N_{v+1} - \left[\left(\sum_{v'} K_{v, v-1}^{v', v'+1} N_{v'} \right) + \left(\sum_{v'} K_{v, v+1}^{v', v'-1} N_{v'} \right) \right] N_v + \right. \\ & \left. + \left(\sum_v K_{v-1, v}^{v'+1, v'} N_{v'+1} \right) N_{v-1} \right\} + \left(\sum_{v'} N_{v'} N_e k_{vv'}^{(e)} - N_v N_e \sum_{v'} k_{vv'}^{(e)} + \right. \\ & \left. + (N_{v+1} A_{v+1, v} - N_v A_{v, v-1}) \right); \quad (1) \end{aligned}$$

здесь N_v — населенность v -го уровня, N — полное число молекул в единице объема, $K_{v, v-1}$ и $K_{v, v+1}^{v', v'+1}$ — константы скоростей колебательно-поступательных и колебательно-колебательных переходов соответственно, N_e — концентрация электронов, $k_{vv'}^{(e)} = \langle \sigma_{vv'}^{(e)} u_e \rangle$ — усредненные по скоростям электронов константы скоростей возбуждения колебательных уровней электронным ударом, $\sigma_{vv'}^{(e)}$ — сечение указанного процесса, u_e — скорость электрона, $A_{v, v-1}$ — вероятность спонтанного излучения (коэффициент Эйнштейна).

При наличии гелия или других газов в системе уравнений (1) возникают новые члены, описывающие колебательные переходы при столкновении молекул СО с молекулами примесей. Следует отметить, однако, что роль таких добавок, как O₂, Хе, Н, не сводится к отмеченному процессу и пока недостаточно ясна.

При стационарных условиях изменение населенностей уровней dN_v/dt равно 0, и система нелинейных дифференциальных уравнений (1) превращается в систему нелинейных алгебраических уравнений второго порядка.

Число уравнений в этой системе определяется энергией диссоциации и константами ангармоничности; в случае СО оно равно ~ 60 . Отметим, что СО-лазер является типично многоуровневой системой и не может быть сведен к двух-, трех- или четырехуровневой модели.

Необходимо подчеркнуть, что система уравнений (1) не описывает полностью поведения реальной среды газоразрядного лазера, так как в нее не включен ряд процессов, таких, например, как процесс разрушения колебательно-возбужденных молекул на стенках разрядной трубки, процесс диссоциации молекул СО при соударениях с электронами и др. Учет этих процессов, с одной стороны, еще более усложнил бы систему уравнений, а с другой стороны — сделал бы отыскание ее решения практически нецелесообразным из-за отсутствия данных о вероятностях указанных процессов. В частности, ничего не известно о скоростях диссоциации с отдельных колебательных уровней молекулы СО, а также о том, происходит ли на стенке полная дезактивация колебательно-возбужденной молекулы или только одноквантовый переход.

Как будет видно далее, совпадение результатов эксперимента и расчетов без учета упомянутых явлений до некоторой степени оправдывает пренебрежение ими в вычислениях.

Следующая глава будет посвящена обсуждению соотношений между включенными в уравнения (1) константами скоростей процессов, приводящих к заселению колебательных уровней СО.

2. ВЕРОЯТНОСТИ КОЛЕБАТЕЛЬНЫХ ПЕРЕХОДОВ В МОЛЕКУЛЕ СО

В связи с тем, что вплоть до недавнего времени отсутствовали экспериментальные данные о вероятностях колебательных переходов между отдельными уровнями, в кинетических расчетах использовались обычно формулы, полученные Герцфельдом с сотрудниками путем квантово-механических расчетов⁹. В этой главе будут представлены теоретические формулы, а также проведено сравнение рассчитанных с их помощью значений вероятностей переходов с экспериментальными данными, появившимися в печати в последнее время¹⁰⁻¹³. Будут приведены также сведения о вероятностях радиационных переходов и о сечениях возбуждения колебательных уровней СО электронным ударом.

а) Столкновительные колебательные переходы. В случае столкновений двух молекул А и В вероятность того, что молекула А испытывает переход с уровня $v + 1$ на уровень v , а молекула В — с уровня $v' - 1$ на уровень v' , записывается следующим образом⁹ ($v \neq v' - 1$):

$$P_{v+1, v}^{v'-1, v'}(a, b) = P_0(a) P_0(b) P_c(v+1) v' (\Delta E_{v+1, v} \Delta E_{v', v'-1})^{-1} \times \\ \times (\lambda^2/M_a)^2 8 (\pi/3)^{1/2} (\pi \mu \Delta E_{v+1, v}^{v'-1, v'})^2 (\chi_{v+1, v}^{v'-1, v'})^{1/2} \times \\ \times \exp[-3\chi_{v+1, v}^{v'-1, v'} + (\Delta E_{v+1, v}^{v'-1, v'} / 2kT_g) + \varepsilon/kT_g], \quad (2)$$

а в случае точного резонанса ($v = v' - 1$) — в виде

$$P_{v+1, v}^{v'-1, v'}(a, b) = \\ = P_0(a) P_0(b) P_c(v+1)^2 [(\alpha^*)^2 \lambda^4 h^2 \mu kT_g / \pi^2 M_a^2 (\Delta E_{v, v-1})^2] e^{\varepsilon/hT_g}. \quad (3)$$

Безразмерные вероятности переходов P и входящие в уравнения (1) константы скоростей K связаны соотношением $ZP = NK$, где Z — число газокинетических столкновений молекул СО в секунду. Множители

в формулах (2) — (3) выражаются следующим образом:

$$P_0(a) P_0(b) = Z_0^{-1} \approx 1/3, \quad P_e = 1,364 [1 + (1,1\varepsilon/kT_g)],$$

где ε — глубина потенциальной ямы, описываемой кривой Леннарда-Джонса:

$$\chi_{v+1, v}^{v'-1, v'} = [2\pi^4 \mu (\Delta E_{v+1, v}^{v'-1, v'})^2 / \alpha^2 h^2 k T_g]^{1/3},$$

$\mu = m_A m_B / (m_A + m_B)$ — приведенная масса сталкивающихся молекул, M_a — приведенная масса осциллятора А, $\lambda \approx 1/2$, α — константа, характеризующая размеры области взаимодействия, $\Delta E_{v+1, v}$ — энергия $(v+1)$ -го колебательного кванта, $\Delta E_{v+1, v}^{v'-1, v'}$ — разность энергий $(v+1)$ -го и v' -го колебательных квантов, T_g — газовая температура.

В случае столкновения гармонических осцилляторов величины $\Delta E_{v+1, v}$ не зависят от номера колебательного уровня, а $\Delta E_{v+1, v}^{v'-1, v'} = 0$. При столкновении же ангармонических осцилляторов

$$\begin{aligned} \Delta E_{v, v-1} &= E_v - E_{v-1} = h c \omega_e (1 - 2\chi_e v), \quad \Delta E_{v, v-1}^{v', v'-1} = \\ &= \Delta E_{v, v-1} - \Delta E_{v', v'-1} = 2h c \omega_e \chi_e (v' - v), \end{aligned}$$

где ω_e и χ_e — константы ангармоничности.

Формулы (2) — (3) представляют собой обобщение формул Герцфельда на случай столкновения ангармонических осцилляторов. Возможность такого обобщения обсуждалась в работе¹⁴.

Вероятности прямых и обратных переходов связаны соотношениями, вытекающими из принципа детального равновесия:

$$\begin{aligned} P_{v+1, v} &= P_{v, v+1} \exp [(E_{v+1} - E_v) / k T_g], \\ P_{v+1, v}^{v'-1, v'} &= P_{v, v+1}^{v', v'-1} \exp [(E_{v+1} - E_v - E_{v'} + E_{v'-1}) / k T_g]. \end{aligned} \quad (4)$$

В случае столкновения двух молекул СО формулы (2) — (3) принимают вид¹⁵

$$\begin{aligned} P_{v+1, v}^{v'-1, v'}(a, a) &= \frac{2,17 \cdot 10^{-3}}{1 + (98/T_g)} \frac{(v+1) v' (|v' - v - 1|)^{7/3}}{(1 - 0,012 v') [1 - 0,012 (v+1)]} \frac{1}{T_g^{1/6}} \times \\ &\times \exp \left[-13,7 \left(\frac{v' - v - 1}{T_g} \right)^{1/3} + \frac{18,8 (v' - v - 1)}{T_g} + \frac{88}{T_g} \right] \quad (v \neq v' - 1), \end{aligned} \quad (5)$$

$$\begin{aligned} P_{v+1, v}^{v'-1, v'}(a, a) &= \{(v')^2 T_g / [1 + (98/T_g)] (1 - 0,012 v')\} \times \\ &\times 2,54 \cdot 10^{-6} \exp (88/T_g) \quad (v = v' - 1), \end{aligned} \quad (6)$$

а в случае столкновения молекулы СО с атомом Не:

$$\begin{aligned} P_{v+1, v}(a, b) &= (v+1) \frac{335}{(1 + 33/T_g)} \left\{ \frac{[1 - 0,012 (v+1)]^2}{T_g} \right\}^{1/6} \times \\ &\times \exp \left\{ -144 \left[\frac{[1 - 0,012 (v+1)]^2}{T_g} \right]^{1/3} + \frac{1560 [1 - 0,012 (v+1) + 30]}{T_g} \right\}. \end{aligned} \quad (7)$$

В работе¹⁶ для вычисления вероятностей колебательных переходов молекулы СО использованы формулы Герцфельда, модифицированные для удобства расчетов путем аппроксимации входящего в них адиабатического множителя

$$F(y) = 8 (\pi/3)^{1/2} y^{7/3} \exp (-3y^{2/3})$$

выражением^{17, 18}

$$F(y) = (1/2) [3 - \exp (-2y/3)] \exp (-2y/3),$$

где

$$y = \begin{cases} y_{v, v-1} = \delta (1 - 2\chi_e v), \\ y_{v', v'-1}^{v', v'+1} = 2\chi_e \delta (|v - v' - 1|), \end{cases}$$

$$\delta = (1/2)^3 (\theta'/T_g)^{1/2}, \quad \theta' = 16\pi^4 \mu v^2 / \alpha^2 k.$$

Полученные в результате формулы для констант скоростей колебательных переходов имеют следующий вид:

$$K_{v, v-1}^{v'-1, v'}(a, a) = Z'(a, a) P^{VV}(a, a) T_g [vv'/(1 - \chi_e v)(1 - \chi_e v')] F(y_{v, v-1}^{v'-1, v'}(a, a)), \quad (8)$$

$$K_{v, v-1}(a, a) = Z'(a, a) P^{VT}(a, a) T_g [v/(1 - \chi_e v)] F(y_{v, v-1}(a, a)), \quad (9)$$

$$K_{v, v-1}(a, b) = Z'(a, b) P^{VT}(a, b) T_g [v/(1 - \chi_e v)] F(y_{v, v-1}(a, b)); \quad (10)$$

здесь $Z'(a, a) = 4\sigma_{aa}^2 (\pi k T_g / 2\mu_{aa})^{1/2} \text{ см}^3 \text{сек}^{-1}$ — число столкновений молекул CO друг с другом в секунду, отнесенное к одной молекуле (σ_{aa} — диаметр столкновения для модели твердых сфер, μ_{aa} — приведенная масса двух молекул CO), $Z'(a, b)$ — то же для столкновения молекул CO с атомами He, $P^{VV}(a, a)$, $P^{VT}(a, a)$, $P^{VT}(a, b)$ — безразмерные константы, характеризующие соответствующий процесс. В работе ¹⁶ эти константы были получены путем сравнения выражений (8) — (10) с результатами измерений времен релаксации CO, приведенными в работах ^{19, 20}. Некоторые значения вероятностей переходов, рассчитанные в работе ¹⁶ для температуры 175 °K по приведенным ранее формулам (8) — (10), содержатся в табл. I. Из нее видно, что вероятности переходов в случае

Таблица I

Скорости колебательных переходов (сек⁻¹) при $T_g = 175^\circ \text{K}$,
 $p_{\text{CO}} = 0,2 \text{ тор}$ и $p_{\text{He}} = 6,0 \text{ тор}$

v	$N_b K_{v, v-1}(a, b)$	$N_a K_{v, v-1}(a, a)$	$N_a K_{v, v-1}^{v-1, v}(a, a)$
1	$5,572 \cdot 10^{-2}$	$8,728 \cdot 10^{-12}$	$1,644 \cdot 10^3$
8	1,415	$1,695 \cdot 10^{-9}$	$1,146 \cdot 10^5$
9	1,878	$3,010 \cdot 10^{-9}$	$1,470 \cdot 10^5$
10	2,462	$5,274 \cdot 10^{-9}$	$1,837 \cdot 10^5$
11	3,195	$9,152 \cdot 10^{-9}$	$2,251 \cdot 10^5$
12	4,112	$1,575 \cdot 10^{-8}$	$2,714 \cdot 10^5$
15	8,442	$7,735 \cdot 10^{-8}$	$4,409 \cdot 10^5$
20	$2,576 \cdot 10^1$	$1,009 \cdot 10^{-6}$	$8,383 \cdot 10^5$
30	$2,032 \cdot 10^2$	$1,455 \cdot 10^{-4}$	$2,171 \cdot 10^6$
40	$1,432 \cdot 10^3$	$1,875 \cdot 10^{-2}$	$4,490 \cdot 10^6$
50	$9,501 \cdot 10^3$	2,279	$1,216 \cdot 10^7$
60	$6,070 \cdot 10^4$	$2,679 \cdot 10^2$	$1,422 \cdot 10^7$

столкновений CO — CO практически всегда на много порядков величины меньше вероятностей VV-переходов, а также вероятностей VT-переходов при столкновениях с атомами He.

В работе ¹⁶ для выбора нормировочных констант были использованы старые экспериментальные данные, причем значение τ при $T_g = 175^\circ \text{K}$ получено путем экстраполяции высокотемпературных данных ¹⁹ в соответствии с ландау-теллеровской температурной зависимостью времени релаксации ²¹. Согласно недавним прямым измерениям ¹⁰, время VT-релаксации смеси CO — He при температуре $T_g = 100^\circ \text{K}$ на два порядка меньше величины, полученной путем экстраполяции. Указанное отличие связано, по-видимому, с пренебрежением дальнедействующими силами

в расчетах ²². Полученные недавно ¹² экспериментальные значения вероятностей VT-переходов ($P_{1,0} = 3,1 \cdot 10^{-8}$) при $T_g = 298$ °К в случае столкновений CO — He ($v = 1 - 13$) приблизительно на два порядка меньше величин, рассчитанных методом Герцфельда ($7,0 \cdot 10^{-6}$).

В связи со значительным различием между экспериментальными и рассчитанными методом Герцфельда величинами, в работе ²³ были сделаны также расчеты вероятностей VT-переходов с учетом дальнедействующих сил при температурах 325 и 550 °К. Результаты расчетов представлены на рис. 1. Из рисунка можно получить при 325 °К значение $P_{1,0} \approx 10^{-9}$.

В экспериментальной работе ¹² получены также значения вероятностей VV-переходов при комнатной температуре. Оказалось, что они также

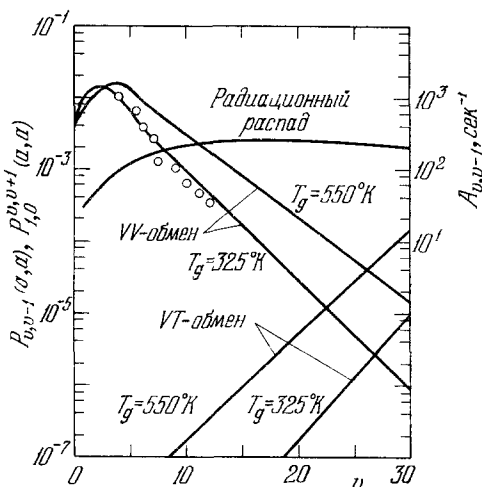


Рис. 1. Зависимость вероятностей колебательных переходов от номера уровня при температурах 325 и 550 °К.

Кружками отмечены экспериментальные значения $P_{1,0}^{v,v-1}$, полученные в работе ¹² при температуре 298 °К.

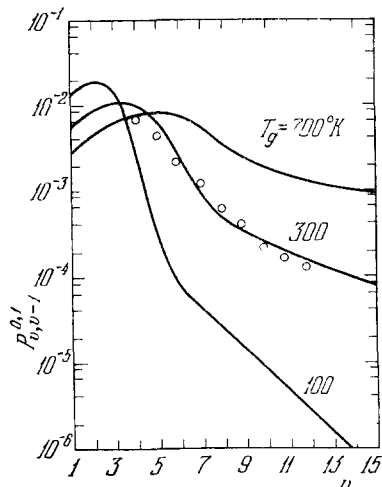


Рис. 2. Зависимость вероятностей VV-переходов от номера уровня при температурах 100, 300 и 700 °К.

Кружками отмечены экспериментальные данные ¹², полученные при температуре 298 °К.

отличаются от теоретических, причем с увеличением номера уровня расхождение с величинами, рассчитанными по формулам Герцфельда, возрастает и для восьмого уровня достигает порядка ($P_{87}^{01} = 5,9 \cdot 10^{-4}$ (эксп.) и $5,6 \cdot 10^{-5}$ (теор.)). Причина указанного расхождения проанализирована в работе ²⁵, в которой было показано, что в расчетах, как и в случае VT-переходов, наряду с короткодействующими силами необходимо учитывать и дальнедействующие ²⁶. Относительный вклад тех и других зависит прежде всего от температуры газа и дефекта энергии рассматриваемого перехода. На рис. 2 приведены зависимости вероятностей VV-переходов от номера уровня для трех значений газовой температуры, полученные в работе ²⁵. Вероятности VV-переходов, рассчитанные с учетом дальнедействующих сил в работе ²³, представлены также на рис. 1. Совпадение рассчитанных и измеренных значений вероятностей переходов при комнатной температуре говорит о том, что расчеты с учетом дальнедействующих сил наиболее надежны.

Приведем, для наглядности, несколько значений вероятностей переходов. При комнатной температуре и давлении 1 атм время релаксации τ чистого CO составляет приблизительно 1 сек ¹³, а в смеси с He — на три порядка меньше ¹⁰; вероятности переходов $P_{1,0}(a,a)$ и $P_{1,0}(a,b)$

соответственно равны 10^{-11} и 10^{-8} . Указанные значения вероятностей VT-переходов на много порядков меньше величины $P_{1,0}^{01}$, которая приблизительно равна $5 \cdot 10^{-3}$. Из рис. 1 и табл. I можно видеть, что вероятности $P_{v, v-1}(a, a)$ и $P_{1,0}^{v, v+1}(a, a)$ равны ($\approx 2 \cdot 10^{-6}$) при значении $v \approx 27$, а $P_{v, v-1}(a, b)$ и $P_{1,0}^{v, v+1}(a, a)$ ($\approx 4 \cdot 10^{-5}$) — при $v \approx 18$. Таким образом, в области значений колебательных уровней, на которых происходит генерация, преобладают VV-переходы. При температуре $T_g = 175^\circ\text{K}$ все значения P уменьшаются приблизительно на порядок, но VV-переходы остаются доминирующими.

б) Радиационные колебательные переходы. Для ангармонической молекулы зависимость коэффициента Эйнштейна от колебательного квантового числа может быть записана в следующем виде ^{16, 27}:

$$A_{v, v-1} = [(E_v - E_{v-1})/E_1]^3 |R_{v, v-1}/R_{1,0}|^2 A_{10}, \quad (11)$$

где

$$R_{v, v-1}/R_{1,0} = -(\chi_e^{-1} - 2)[(\chi_e^{-1} - 1)/(\chi_e^{-1} - 3)(\chi_e^{-1} - 5)]^{1/2} \times \\ \times [(-1)^{2v-1}/(\chi_e^{-1} - 2v)][v(\chi_e^{-1} - 2v - 1)(\chi_e^{-1} - 2v - 3)(\chi_e^{-1} - v)^{-1}]^{1/2}, \quad (12)$$

A_{10} — коэффициент Эйнштейна для перехода $1 \rightarrow 0$. В случае молекулы CO $A_{10} = 30,303 \text{ сек}^{-1}$ ¹⁶; значения остальных коэффициентов, рассчитанные по формулам (11) — (12), приведены на рис. 1 и в табл. II.

Таблица II
Вероятности радиационных переходов при $T_g = 300^\circ\text{K}$ ¹²

v	$A_{v, v-1},$ сек^{-1}	$A_{v, v-2},$ сек^{-1}	v	$A_{v, v-1},$ сек^{-1}	$A_{v, v-2},$ сек^{-1}
1	33,4	—	8	210,4	25,1
2	64,5	0,9	9	214,1	32,0
3	92,9	2,8	10	227,1	39,3
4	118,0	5,6	11	238,8	47,7
5	142,0	9,3	12	248,5	56,2
6	164,3	13,9	13	256,3	65,6
7	182,0	19,0	14	262,5	75,0

Можно видеть, что вследствие ангармоничности молекулы зависимость $A_{v, v-1}$ от номера уровня — нелинейная, а при значениях $v > 10$ вероятности переходов остаются постоянными. В табл. II приведены также значения вероятностей двухквантовых радиационных переходов. При давлении CO 1 тор их вклад становится ощутимым для переходов между достаточно высокими уровнями ($v > 10$).

Сопоставив значения вероятностей столкновительных и радиационных колебательных переходов, можно заключить, что в CO — He-лазере с давлениями $p_{\text{CO}} = 0,2 \text{ тор}$ и $p_{\text{He}} = 6 \text{ тор}$ при комнатной температуре разрушение колебательных уровней со значениями $v < 15$ происходит главным образом вследствие радиационных переходов.

в) Возбуждение колебательных уровней CO и N_2 электронным ударом. При анализе работы CO_2 -лазера было отмечено ², что доминирующим процессом накачки верхнего лазерного уровня молекул CO_2 является непосредственное электронное возбуждение колебательных уровней молекул CO и N_2 , содержащихся

в разряде, и последующий переход энергии к колебательным уровням CO_2 . Указанное заключение было сделано на основании экспериментальных данных о сечениях столкновений электронов с молекулами, содержащихся в работе Шульца²⁸. Очевидно, что указанный механизм возбуждения осуществляется и в СО-лазере^{11, 14}.

Напомним, что, согласно результатам Шульца (рис. 3), сечения возбуждения колебательных уровней СО электронным ударом велики; полное сечение возбуждения восьми уровней при энергии электронов 1,8 эВ достигает $8 \cdot 10^{-16} \text{ см}^2$. На рис. 4 приведены парциальные сечения возбуждения отдельных уровней. Из него видно, что сечения возбуждения двух первых уровней в несколько раз больше сечений возбуждения остальных уровней. Можно подсчитать, что при одном столкновении возбуждается приблизительно четыре колебательных кванта.

Для получения констант скоростей возбуждения молекул в лазерном разряде необходимо произвести усреднение

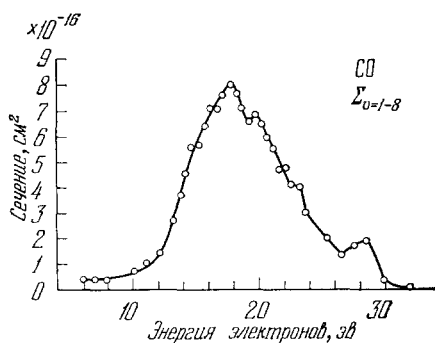


Рис. 3. Зависимость полного эффективного сечения возбуждения восьми колебательных уровней СО электронным ударом от энергии электронов²⁸.

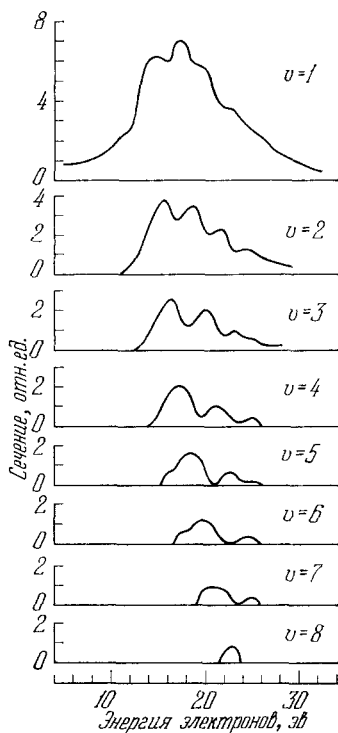


Рис. 4. Зависимость парциальных сечений возбуждения колебательных уровней СО электронным ударом от энергии электронов²⁸.

величин σ_i по распределению скоростей электронов. В работе¹⁶ зависимости сечений возбуждения от энергии электронов приближенно выражались гауссовыми функциями:

$$\sigma_{v'v}(\epsilon) = \bar{\sigma}_{v'v} \exp [-(\epsilon - \epsilon_{v'v})^2 / \alpha_{v'v}],$$

где $\bar{\sigma}_{v'v}$, $\epsilon_{v'v}$, $\alpha_{v'v}$ — константы, которые подбирались таким образом, чтобы гауссовы кривые наиболее близко совпадали с экспериментальными кривыми Шульца, а усреднение производилось по максвелловскому распределению. В результате константа скорости возбуждения первого уровня, например, получилась в работе¹⁶ равной $2,87 \cdot 10^{-9} \text{ см}^3 \cdot \text{сек}^{-1}$ (для $T_e = 20\,000 \text{ }^\circ\text{K}$).

Недавно выполнены зондовые измерения функции распределения электронов в плазме СО-лазера²⁹ (см. также¹). Были исследованы смеси СО — Не — O_2 (отношения давлений 1 : 10 : 0,1 и 1 : 30 : 0,1) при давлениях 3—7 тор и токах разряда 20—60 ма в проточной и беспроточной системах. Обнаружено, что в смесях с большим количеством Не распреде-

ления электронов близки к максвелловским со средними энергиями 2,5—4 эв. Им соответствуют константы скорости возбуждения, равные $(1,2-2,0) \cdot 10^{-8} \text{ см}^3 \cdot \text{сек}^{-1}$. Типичные функции распределения в смеси СО — Не для $p = 5 \text{ тор}$ и $i = 40 \text{ ма}$ приведены на рис. 5. Если давление СО в разряде при 100 °К равно 0,3 тор, а концентрация электронов $N_e = 2,5 \cdot 10^9 \text{ см}^{-3}$, то скорость возбуждения будет равна приблизительно $10^{18} \text{ см}^{-3} \text{ сек}^{-1}$. Поскольку в одном акте столкновения возбуждается в среднем четыре кванта, мощность накачки будет соответственно равна $0,1 \text{ вт/см}^3$. Такого же порядка, но большая по величине мощность ($\sim 0,4 \text{ вт/см}^3$) была получена экспериментально³⁰. В связи с этим можно заключить, что процесс накачки электронным ударом достаточен для обеспечения наблюдаемых значений плотностей мощности. Некоторое различие указанных выше величин указывает, по-видимому, на то, что при заселении электронным ударом определенную роль играют процессы ступенчатого возбуждения.

3. КОЛЕБАТЕЛЬНАЯ РЕЛАКСАЦИЯ СИСТЕМЫ АНГАРМОНИЧЕСКИХ ОСЦИЛЛЯТОРОВ

Если в системе кинетических уравнений (1) отбросить два последних члена в круглых скобках, связанных с накачкой электронным ударом и радиационными переходами соответственно, то она будет описывать чисто колебательную релаксацию двухатомного газа (в данном случае — СО). Анализ указанной системы показывает⁷, что, вследствие различия между $P(VV)$ и $P(VT)$ ($P(VV) \gg P(VT)$), в случае модели гармонических осцилляторов процесс релаксации характеризуется двумя временными масштабами $\tau_{VV} = O[(NP_{1,0}^{11})^{-1}]$, $\tau_{VT} = O[(NP_{1,0})^{-1}]$ ($\tau_{VV} \ll \tau_{VT}$) и происходит в две стадии. На первой, быстрой, стадии устанавливается больцмановское распределение по колебательным уровням, зависящее от общего запаса колебательных квантов. На второй, медленной, стадии больцмановская форма распределения сохраняется, но происходит снижение колебательной температуры. Процесс колебательной релаксации двухатомного газа в случае системы ангармонических осцилляторов рассмотрен в работах^{8, 18, 31}, причем в работе⁸ впервые получен качественно новый, по сравнению со случаем релаксации системы гармонических осцилляторов, результат: возможность небольцмановского и даже инверсного заселения уровней в процессе релаксации. В связи с принципиальной важностью указанного результата мы изложим далее основные положения работы⁸.

Из гл. 2 можно видеть, что в случае ангармоничности соотношение $P(VV) \gg P(VT)$ справедливо не всегда, как в случае гармонических осцилляторов, а до определенного значения номера колебательного уровня v_0 . При всех значениях v , превышающих v_0 , соотношение между вероятностями переходов становится обратным написанному выше. Значение номера v_0 , при котором вероятности $P(VV)$ и $P(VT)$ равны, зависит

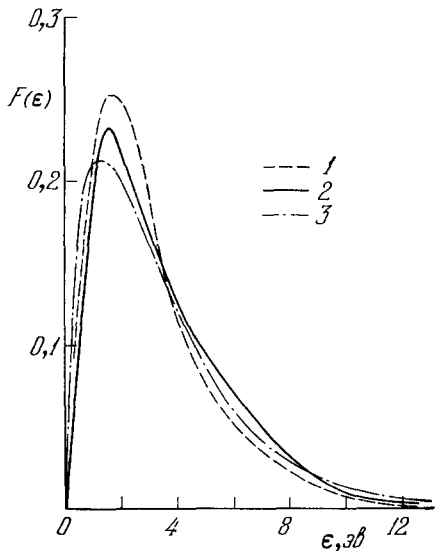


Рис. 5. Функции распределения электронов по энергиям в смеси СО — Не²⁹.

1 — $p_{\text{CO}} : p_{\text{He}} = 1 : 10$, средняя энергия электронов $\bar{\epsilon} = 2,98 \text{ эв}$; 2 — $p_{\text{CO}} : p_{\text{He}} = 1 : 30$, $\bar{\epsilon} = 3,38 \text{ эв}$; 3 — максвелловская кривая для $\bar{\epsilon} = 3,38 \text{ эв}$.

от газовой температуры T_g и уменьшается с увеличением T_g . Таким образом, существуют две области значений номеров колебательных уровней, в которых осуществляются различные режимы релаксации. При достаточно низких температурах, когда ν_0 велико, доминирующей является VV-релаксация. Именно этот режим и рассматривался в работе ⁸.

В режиме с преобладанием VV-переходов ($\epsilon = P_{1,0}/P_{1,0}^0 \ll 1$) можно ввести, как и в случае системы гармонических осцилляторов, два различных временных масштаба τ_{VV} и τ_{VT} ($\tau_{VV} \ll \tau_{VT}$) и использовать процедуру разложения Чэпмена — Энскога по малому параметру ϵ , сохраняя в кинетических уравнениях лишь члены, описывающие обмен колебательной энергией.

Непосредственной подстановкой легко проверить, что решением такой системы является

$$N_v = N_0 e^{-\gamma v} \exp(-E_v/kT_g), \quad (13)$$

где γ — параметр. Удобно переписать формулу (13) в виде

$$N_v = N_0 \exp(-E_v/kT_v^*),$$

где T_v^* — «температура», различная, вообще говоря, для различных уровней. Параметр γ можно представить в виде

$$\gamma = (E_1/kT_1^*) - (E_1/kT_g). \quad (14)$$

Величины γ и T_v^* зависят от времени (масштаб времени определяется вероятностями VT-переходов). При достижении равновесия с поступательными степенями свободы все T_v^* становятся равными T_g .

Подставляя значение γ в (13), выражение для населенности v -го уровня записываем в виде

$$N_v = N_0 \exp\{(-E_1 v/kT_1^*) + [(E_1 v - E_v)/kT_g]\}. \quad (15)$$

Ясно, что в случае системы гармонических осцилляторов ($E_v = vE_1$) оно принимает форму больцмановского распределения. Можно получить следующее соотношение между T_v^* и T_1^* :

$$T_v^*/T_1^* = \{(vE_1/E_v) - (T_1^*/T_g)\} [(vE_1 - E_v)/E_v]^{-1}. \quad (16)$$

Отсюда видно, что при $T_1^* = T_g$ реализуется больцмановское распределение с колебательной температурой $T_v^* = T_1^* = T_g$. Если $T_1^* \neq T_g$, то наблюдается отклонение от больцмановского распределения: при $T_1^* > T_g$ из (16) следует, что $T_v^* > T_1^*$ («колебательная температура» уровня увеличивается с возрастанием номера уровня); при $T_1^* < T_g$ получим $T_v^* < T_1^*$ («колебательная температура» уменьшается с возрастанием номера уровня). Главная особенность формулы (16) состоит в том, что из нее следует возможность инверсного заселения уровней при $T_1^* > T_g$. Распределение населенностей, описываемое формулой (15) или (16), представлено на рис. 6. Можно видеть, что в то время как низкие уровни имеют больцмановские населенности, инверсное заселение высоколежащих уровней чрезвычайно велико. Не следует забывать, однако, что соответствующая формула получена при учете лишь VV-переходов, а в случае высоколежащих уровней возрастает и даже становится доминирующей (см. рис. 4) роль VT-переходов.

В работе ³² рассмотрен второй режим релаксации ангармонических осцилляторов, характеризуемый доминирующей ролью VT-переходов. Такое рассмотрение, однако, вряд ли оправдано ³³, так как VT-режим релаксации осуществляется лишь на высоколежащих уровнях и его нельзя рассматривать изолированно, т. е. без учета VV-переходов между низкими уровнями.

Перенаселенность высоких колебательных уровней ангармонического осциллятора по сравнению с больцмановским распределением с колебательной температурой T_v становится качественно понятной, если рассмотреть две молекулы А и В, каждая из которых может находиться только в двух состояниях 1, 2 и 3, 4 соответственно (рис. 7). Пусть их кванты отличаются на величину $\Delta E = (E_2 - E_1) - (E_4 - E_3)$. Молекула В моделирует более высокое состояние ангармонического осциллятора, молекула А — более низкое. Пусть молекула А находится в состоянии 2, а молекула В — в состоянии 3. При столкновении молекул А и В первая

может перейти из состояния 2 в состояние 1 ($2 \rightarrow 1$) и передать свою энергию второй молекуле, которая возбудится и перейдет из состояния 3 в состояние 4 ($3 \rightarrow 4$). Эти процессы изображены на рис. 7 сплошными

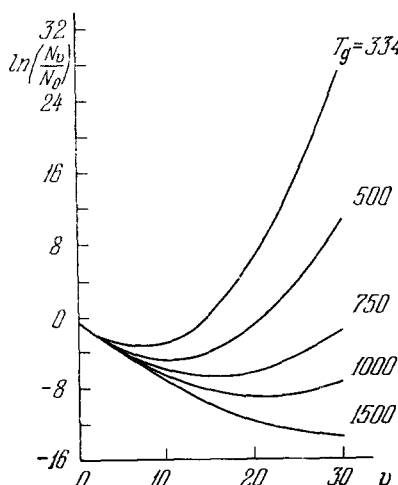


Рис. 6. Трейноровское распределение населенностей колебательных уровней при температурах T_g от 334 до 1500 °K и $T_1^* = 4000$ °K⁸.

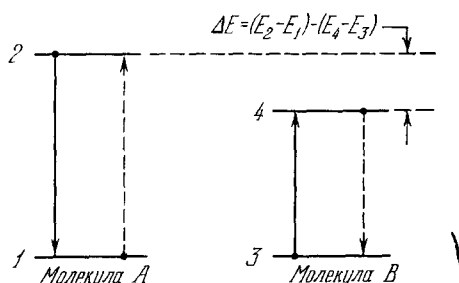


Рис. 7. Энергетические уровни молекул А и В.

стрелками. Обратные процессы изображены штриховыми стрелками. Скорости прямого и обратного процессов, согласно уравнению (4), связаны соотношением

$$P_{1,2}^{4,3} = \exp(-\Delta E/kT_g) P_{2,1}^{3,4}.$$

Из этой формулы следует, что при низких газовых температурах $P_{2,1}^{3,4} \gg P_{1,2}^{4,3}$ система В будет накачиваться за счет системы А, что может привести к возникновению инверсной населенности между уровнями 3 и 4.

Хотя условия, при которых выше получено заключение о возможности инверсного заселения колебательных уровней, являются слишком идеализированными, необходимость учета ангармоничности при рассмотрении механизма образования инверсии в лазерной среде несомненна.

В гл. 4 и 5 будут описаны работы, в которых проведены расчеты населенностей колебательных уровней СО в лазерном разряде с учетом, наряду со столкновительными колебательными переходами, также процессов возбуждения молекул электронным ударом и радиационных переходов.

4. НАСЕЛЕННОСТИ КОЛЕБАТЕЛЬНЫХ УРОВНЕЙ СО В АКТИВНЫХ СРЕДАХ СО-ЛАЗЕРОВ

В этой главе будут обсуждены работы, в которых рассчитывались населенности колебательных уровней молекул СО в активных средах СО-лазеров^{15, 16, 23}. В отличие от работы Трейнора и др.⁸, расчеты проводились с учетом радиационных процессов, VT-переходов, процессов

электронного возбуждения и др. (см. систему уравнений (1)). В работах ³⁴ наряду с VV-переходами были рассмотрены радиационные и VT-переходы, причем впервые в линейном приближении получено аналитическое решение системы (1), которое является обобщением решения Трейнора и переходит в него, если ограничиться только VV-переходами. В работах же ^{15, 16, 23} для решения системы уравнений (1) использовались численные расчеты.

а) СО-лазер при температуре жидкого азота.

1) *Результаты расчетов населенностей.* Заселение колебательных уровней молекул СО в плазме газового разряда СО — Не-лазера, работающего при низких температурах, исследовалось в работах ^{15, 16}. В работе ¹⁶,

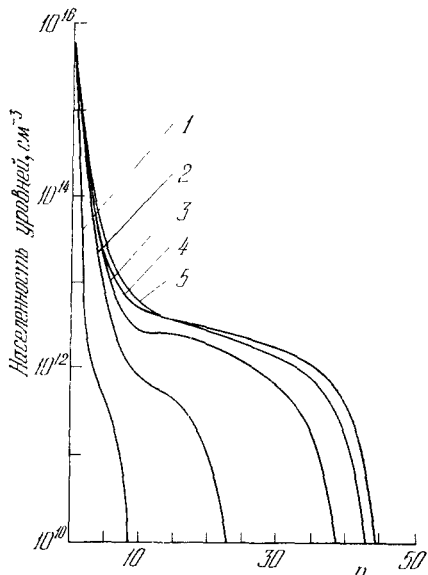


Рис. 8. Распределение населенностей колебательных уровней в смеси СО — Не.

$p_{\text{CO}} = 0,2 \text{ тор}$, $p_{\text{He}} = 6 \text{ тор}$, $N_e = 2,5 \cdot 10^9 \text{ см}^{-3}$, $T_g = 175^\circ \text{K}$, $T_e (10^3^\circ \text{K}) = 5 (1), 10 (2), 15 (3), 20 (4) \text{ и } 30 (5)$.

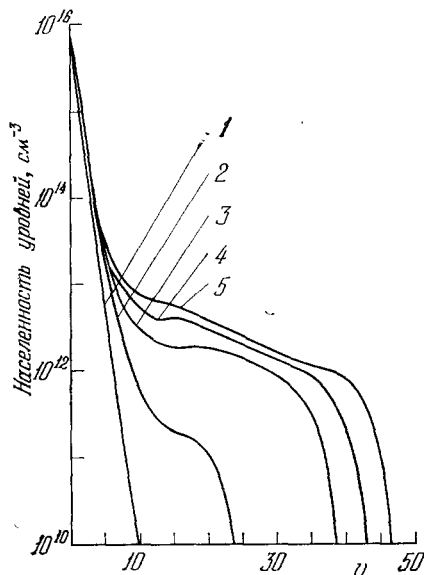


Рис. 9. Распределение населенностей колебательных уровней в смеси СО — Не.

$p_{\text{CO}} = 0,2 \text{ тор}$, $p_{\text{He}} = 6 \text{ тор}$, $N_e = 2,5 \cdot 10^9 \text{ см}^{-3}$, $T_e = 20\,000^\circ \text{K}$, $T_g (10^3^\circ \text{K}) = 500 (1), 300 (2), 200 (3), 175 (4) \text{ и } 150 (5)$.

из-за отсутствия точных данных о свойствах плазмы лазерного разряда, расчеты были проведены для большого набора параметров ($N_e = 2,5 \cdot 10^8 - 2,5 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-3}$, $T_g = 150 - 500^\circ \text{K}$, $T_e = 5000 - 30000^\circ \text{K}$); распределение электронов по скоростям принималось максвелловским.

Из большого количества кривых, приведенных в работе ¹⁶, мы выбрали для иллюстрации лишь те, которые наиболее близко соответствуют параметрам плазмы лазерного разряда (см. ¹). Результаты расчетов для $p_{\text{CO}} = 0,2 \text{ тор}$, $p_{\text{He}} = 6 \text{ тор}$, $N_e = 2,5 \cdot 10^9 \text{ см}^{-3}$, $T_e = 5000 - 30\,000^\circ \text{K}$, $T_g = 150 - 500^\circ \text{K}$ приведены на рис. 8 и 9. Можно видеть, что полная инверсия не возникает ни в одном случае. При больших значениях T_e и малых значениях T_g на кривых распределения между 10 и 15 уровнями имеются плато, т. е. населенности этих уровней почти одинаковы. Образование такого плато есть результат вклада VV-процессов. Указанное утверждение было проверено путем решения уравнений, не содержащих членов, соответствующих VV-переходам. В этом случае оказались значительно заселенными лишь уровни, возбуждаемые электронным ударом ($v \leq 8$), причем их населенности падали гораздо быстрее,

чем при бoльцмановском распределении, соответствующем электронной температуре, что является следствием прежде всего радиационных переходов. Следующий за плато спад кривых обусловлен возрастанием роли VT-переходов и радиационных потерь.

Одной из характерных особенностей кривых распределения населенностей, приведенных на рис. 8, является малая чувствительность распределений к изменению электронной температуры от 20 000 до 30 000 °K. По-видимому, эти температуры оптимальны для накачки на колебательные уровни CO. Вероятно, что при более высоких, чем 30 000°, температурах населенности уровней будут уменьшаться с ростом T_e . Второй особенностью, которую можно увидеть из рис. 8, является слабая зависимость колебательной температуры T_1^* от T_e в интервале T_e от 10 000 до 30 000 °K. При меньших концентрациях электронов N_e ($2,5 \cdot 10^8$ см⁻³) чувствительность T_1^* к изменению T_e сильнее, при больших N_e ($2,5 \cdot 10^{10}$ — $2,5 \cdot 10^{11}$ см⁻³) — слабее (см. рис. 3—6 из статьи ¹⁶).

Важнейшей особенностью модели ангармонических осцилляторов является существенное влияние поступательной температуры газа T_g на населенности колебательных уровней. Из рис. 9 видно, что, когда T_g возрастает от 150 до 500 °K, плато исчезает полностью. Это связано с тем, что с увеличением температуры уменьшается роль процесса возбуждения высоколежащих уровней, связанного с VV-переходами. Кроме того, увеличивается роль VT-переходов, так как вероятности последних обнаруживают сильную температурную зависимость. Эти два фактора ответственны за возрастание мощности генерации CO-лазера при охлаждении

стенок газоразрядной трубки жидким азотом. Роль гелия также сводится к снижению поступательной и вращательной температур газа путем увеличения скорости теплопереноса к холодным стенкам. В отличие от CO₂-лазера, увеличение скорости VT-переходов под влиянием гелия в данном случае неблагоприятно (рис. 10). Однако повышение давления He от 6 до 50 тор не приводит к изменению T_1^* и даже населенностей первых десяти уровней; населенности уровней от 10 до 20 меняются незначительно. В случае больших концентраций гелия (~50 тор) необходимо, по-видимому, принимать во внимание тройные столкновения CO — CO — He, облегчающие обмен колебательными квантами между молекулами CO ³⁵.

В работе ¹⁵, наряду с численным решением системы уравнений (1), получены также решения системы уравнений, из которой были исключены члены, описывающие электронную накачку. Вместо них накладывалось дополнительное требование постоянства «температуры» T_1^* первого колебательного уровня молекул CO. Напомним, что в предельном случае чистых VV-переходов параметр T_1^* определяет распределение по всем уровням ⁸. Использование параметра T_1^* позволяет избежать трудностей,

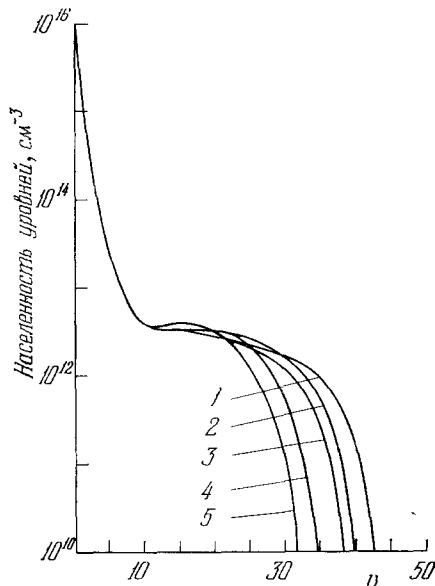


Рис. 10. Распределение населенностей колебательных уровней в смеси CO — He. $p_{CO} = 0,2$ тор, $N_e = 2,5 \cdot 10^9$ см⁻³, $T_g = 175$ °K, $T_e = 20\,000$ °K, p_{He} (тор) = 6 (1), 10 (2), 15 (3), 30 (4) и 50 (5).

связанных с недостаточностью сведений об эффективных сечениях возбуждения колебательных уровней молекул СО электронным ударом, поскольку «колебательная температура» первого уровня СО может быть получена экспериментально¹.

На рис. 11 приведены распределения по колебательным уровням, полученные в работе¹⁵ при различных значениях параметра T_1^* (1700—2900 °К), характеризующего величину накачки. Расчеты проведены для случая смеси СО : Не с отношением парциальных давлений СО и Не, равным 1 : 10, при полном давлении 4 тор и $T_g = 150$ °К. Можно видеть,

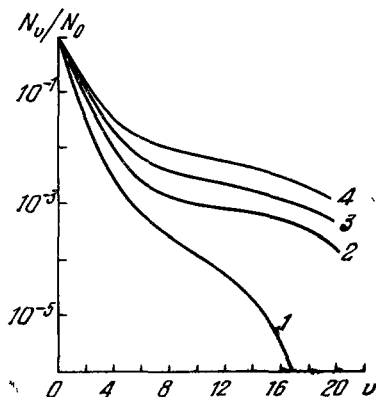


Рис. 11. Распределения молекул по колебательным уровням при значениях параметра T_1^* (K) = 1700 (1), 2000 (2), 2300 (3) и 2900 (4).
 $p_{\text{СО}} : p_{\text{Не}} = 1 : 10$, $p = 4$ тор, $T_g = 150$ °К.

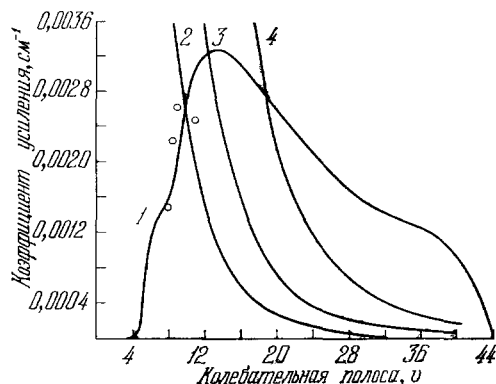


Рис. 12. Зависимость коэффициента усиления от номера колебательного уровня¹⁶. Кривая 1 получена при учете ангармоничности. Кривые 2 ($T_v = 7500$ °К), 3 ($T_v = 8500$ °К) и 4 ($T_v = 10\,000$ °К) получены для случая больцмановского заселения уровней. Кругжками отмечены результаты измерений²⁴.

что на всех кривых, как и на рис. 8—10, в области значений колебательных уровней от 7 до 12 наблюдаются плато, характеризующиеся самой высокой колебательной температурой.

2) *Сравнение теории с экспериментом.* Первое сравнение изложенной выше теории с экспериментом выполнил Рич¹⁶. Результаты этого сравнения иллюстрирует рис. 12, на котором приведена зависимость максимального показателя усиления от колебательного квантового числа. Кривая 1 рассчитана в соответствии с развитой выше теорией. При расчетах было принято, что температура и концентрация электронов равны соответственно 20 000 °К и $2,5 \cdot 10^{10}$ см⁻³, температура газа 175 °К, $p_{\text{СО}} = 0,2$ тор и $p_{\text{Не}} = 6$ тор. Кривые 2—4 рассчитаны в предположении больцмановского распределения по колебательным уровням с температурами 7500, 8500 и 10 000 °К. Кругжками показаны экспериментальные данные Хэвея²⁴, полученные методом просвечивания СО-усилителя излучением СО-генератора, о чем можно судить по краткому сообщению³⁶. При расчете кривой 1 концентрация и температура электронов подобраны так, чтобы наблюдать наилучшее согласие теории с экспериментом. Поэтому более существенно не абсолютное согласие показателей усиления, а вид зависимости от колебательного квантового числа. Как видно из рис. 12, экспериментальный показатель усиления возрастает при переходе от полосы 7—6 к полосе 10—9 и затем уменьшается. Согласно теории, представленной кривой 1, показатель усиления становится заметным при $v = 4$, возрастает с ростом v , достигает максимума при $v = 14$ и затем уменьшается до нуля при $v = 44$. Зависимость показателя усиления от v при максвелловском распределении (кривые 2—4) существенно отличается от экспе-

риментальной зависимости, полученной Хэвеем, и теоретической, представленной кривой 1. При больцмановском распределении с температурами 7500—10 000 °К максимумы усиления должны наблюдаться при малых ν и α_{\max} должны быть большими по абсолютной величине ($\alpha_{\max} = 9,4 \cdot 10^{-3} \text{ см}^{-1}$ при $\nu = 3$ и $T_v = 7500 \text{ °К}$, $\alpha_{\max} = 1,6 \cdot 10^{-2} \text{ см}^{-1}$ при $\nu = 3$ и $T_v = 8500 \text{ °К}$, $\alpha_{\max} = 2,7 \cdot 10^{-2}$ при $\nu = 4$ и $T_v = 10\,000 \text{ °К}$). Кроме того, должны наблюдаться большие значения α и вблизи максимумов, т. е. для переходов от $\nu = 1 - 0$ до $\nu = 8 - 7$. Лучшее согласие для относительных показателей усиления и положения максимума на кривой

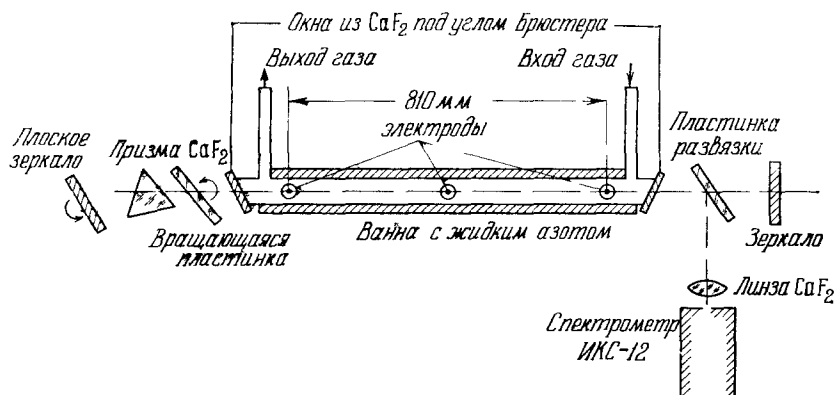


Рис. 13. Экспериментальная установка для измерения коэффициентов усиления ³⁷.

зависимости усиления от ν может быть получено при больших колебательных температурах ¹, однако вопрос об отличии абсолютных значений α от экспериментальных не только не будет снят, но еще и усугубится.

Таким образом, предположение о больцмановском распределении по колебательным уровням в СО-лазере противоречит эксперименту, и для получения хотя бы качественного согласия с ним необходимо привлечь теорию, изложенную выше. Подчеркнем, что в приведенном сопоставлении теории и эксперимента имеется существенный дефект. Не зная ни температуры электронов, ни их концентрации, Рич должен был выбирать обе эти величины по лучшему согласию теории и эксперимента. § 4

Более корректное сравнение развитой выше теории с экспериментом (благодаря тому, что авторы имели в своем распоряжении данные о концентрации электронов) приведено в работе ³⁷. Экспериментальные данные были получены методом калиброванных потерь на установке, изображенной на рис. 13. В резонаторе СО-лазера с газоразрядной трубкой длиной 810 мм и диаметром 20 мм помещались призма из CaF_2 , вращающаяся пластинка для регулировки потерь и пластинка для вывода излучения из резонатора к спектрометру. При установке вращающейся пластинки под углом Брюстера в генерации участвовало не более трех соседних линий; при увеличении потерь оставалась одна линия. Потери, соответствующие прекращению генерации на этой линии (с учетом постоянных потерь), определяли коэффициент усиления малого сигнала этой линии. Измерения были проведены на 27 колебательно-вращательных линиях. Населенности колебательных уровней и температура газа определялись из системы уравнений, составленных на основании измеренных коэффициентов усиления для колебательно-вращательных линий с различными ν и J . Каждое из уравнений имело вид

$$\alpha(J) = (8\pi^3/k) (Mc^3/2\pi k)^{1/2} T_g^{-3/2} K_{12} J \times \\ \times (N_1 B_1 e^{-F_1(J-1)hc/kT_g} - N_2 B_2 e^{-F_2(J)hc/kT_g}),$$

где $\alpha(J)$ — показатель усиления линии с вращательным квантовым числом J нижнего уровня, B_1, B_2 — вращательные константы, N_1, N_2 — населенности колебательных уровней, $F_1(J) = B_1 J(J+1)$, $F_2 = B_2 J(J+1)$; F_1, N_1, B_1 относятся к верхнему уровню, а F_2, N_2, B_2 — к нижнему уровню, $K_{12} = [(2J-1)/J] (2h\lambda^3/64\pi^4) A_{12}$, A_{12} — коэффициент Эйнштейна.

Измерения были проведены при силе тока $i = 15$ ма, которой, согласно ³⁸, соответствует концентрация электронов $2,9 \cdot 10^9$ см⁻³. Результаты эксперимента сопоставлены с расчетами Рича ¹⁶ на рис. 14. Как видно из рисунка, имеет место удовлетворительное согласие теории и эксперимента при $T_e = 15000$ °К. На рис. 15 приведено сравнение тех же экспериментальных данных ³⁷ с результа-

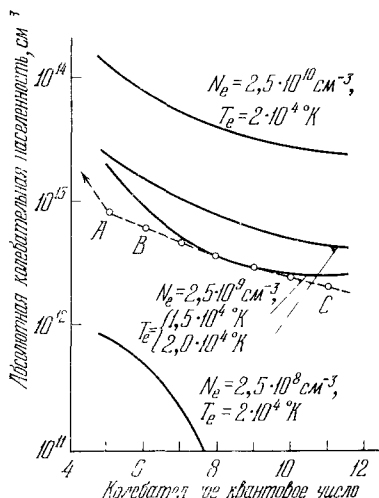


Рис. 14. Сравнение населенностей колебательных уровней, рассчитанных в работе ¹⁶ и полученных из измерений коэффициента усиления в работе ³⁷.

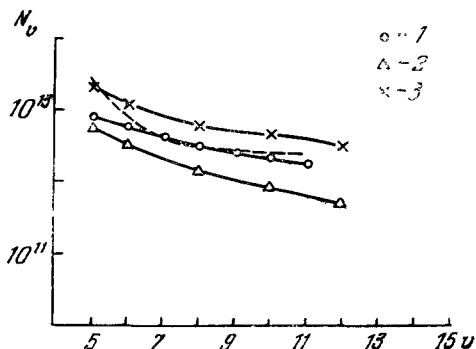


Рис. 15. Сравнение распределений по уровням, полученных в результате расчетов ^{15, 16} и эксперимента ³⁷.

1 — экспериментальные значения ($T_g = 180$ °К, $p_{CO} = 0,2$ тор, $p_{He} = 6,0$ тор, $p_{O_2} = 0,1$ тор);
2 ($T_1^* = 1700$ °К) и 3 ($T_1^* = 2000$ °К) — результаты расчетов ¹⁵. Штриховой линией нанесены результаты расчетов Рича ¹⁶, проведенные при $N_e = 2,5 \cdot 10^9$ см⁻³ и $T_e = 20000$ °К. Все расчеты выполнены для $p_{CO} = 0,2$ тор, $p_{He} = 6$ тор, $T_g = 175$ °К.

тами расчетов, проведенных в работе ¹⁵. Можно видеть, что экспериментальные точки лежат между кривыми, соответствующими значениям параметра T_1^* , равным 1700 и 2000 °К. Отметим, что экспериментально измеренные значения T_1^* при близких условиях лежат в тех же пределах (см. ¹).

б) СО-лазер при комнатной температуре. 1) *Результаты расчетов населенностей*. Расчеты населенностей колебательных уровней СО в активной среде СО — N₂-лазера при комнатной температуре были проведены в работах ^{23, 39}. Впервые теоретическое заключение об установлении небульмановского распределения по уровням, которое практически совпадало с распределением, полученным экспериментально Леегом и др. ⁴⁰, сделано в кратких сообщениях ³⁹, в которых рассматривалась смесь с давлениями СО и N₂, равными 0,3 и 6,0 тор соответственно, при температуре 330 °К.

Колебательная температура N₂ принималась равной 1700 °К, а обмен колебательной энергией между N₂ и СО учитывался как обмен между первыми возбужденными уровнями этих молекул.

В работе ²³ расчеты проведены при нескольких значениях газовых температур для чистого СО и для смеси СО — N₂. Как и в предыдущих

расчетах этих авторов³⁹, а также в работе¹⁵, накачка определялась населенностью первого колебательного уровня СО, «колебательная температура» которого в большинстве случаев полагалась равной 2700 °К. На рис. 16 показаны относительные населенности колебательных уровней в чистом СО, полученные без учета радиационных процессов в случае использования вероятностей VT-переходов, представленных на рис. 1, а также в том случае, когда указанные вероятности увеличены ($r = 10^2$) или уменьшены

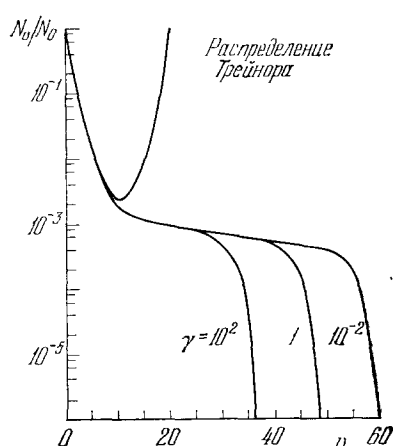


Рис. 16. Распределения населенностей колебательных уровней в чистом СО, полученные в случае использования вероятностей VT-переходов, представленных на рис. 1 ($r = 1$), а также увеличенных ($r = 10^2$) или уменьшенных ($r = 10^{-2}$) на два порядка²³.

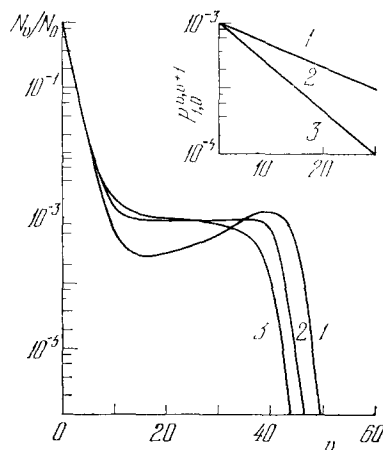


Рис. 17. Распределения населенностей колебательных уровней в чистом СО, полученные для трех (1—3) искусственно выбранных зависимостей вероятностей переходов $P_{1,0}^{v,v+1}$ от номера уровня, приведенных в правом верхнем углу рисунка.

($r = 10^{-2}$) на два порядка. Верхняя кривая описывает трейноровское распределение. Из рис. 16 видно, что «высокая» колебательная температура сохраняется до очень больших значений v .

На рис. 17 показано, как деформируются распределения по уровням при некоторых искусственно выбранных зависимостях вероятностей переходов от номера уровня. Можно видеть, что в случае, когда $P_{1,0}^{v,v+1}$ не зависит от номера уровня, становится возможной абсолютная инверсия (кривая 1).

В связи с тем, что энергии первых колебательных уровней ^{12}CO и N_2 значительно отличаются (на 188 см^{-1}), существует различие в их колебательных температурах. В случае $T_g = 325 \text{ °K}$, например, колебательная температура СО 2700 °К может поддерживаться при колебательной температуре N_2 1700 °К. Вследствие сравнительно низкой колебательной температуры азота колебательные кванты сосредоточиваются в основном на первых трех уровнях молекул N_2 . Поэтому характер распределения на более высоких колебательных уровнях N_2 не должен существенно влиять на вид распределения по уровням СО. Авторами работы²³ населенности уровней N_2 в смеси СО — N_2 не рассчитывались. Предполагалось, что они характеризуются трейноровской кривой вплоть до ее минимального значения, населенности же последующих уровней принимались одинаковыми.

На рис. 18 приведены распределения населенностей колебательных уровней СО, рассчитанные для давления чистого СО 0,1 тор и смеси СО — N_2 с парциальными давлениями 0,1 и 0,2 тор соответственно.

Можно видеть, что различие наблюдается только для больших номеров уровней. Это связано с тем, что скорости VT-переходов для больших v возрастают по сравнению со случаем чистого СО, так как количество N_2 достаточно велико.

2) *Сравнение теории с экспериментом.* К настоящему времени имеется одна экспериментальная работа, в которой проведены измерения населенностей колебательных уровней СО при условиях, реально существующих в СО-лазерах, работающих при комнатной температуре. Это — работы группы Легея ⁴⁰. Так же как и во всех предыдущих исследованиях этой

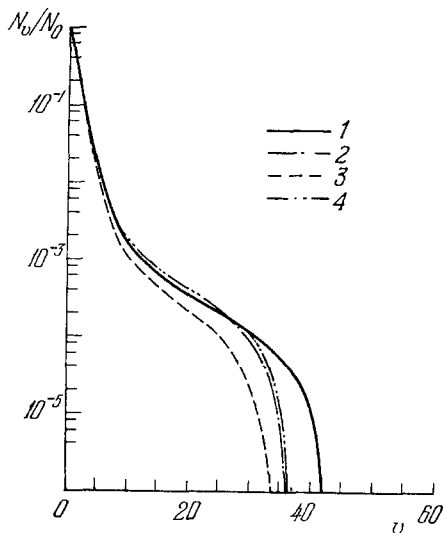


Рис. 18. Распределение населенностей колебательных уровней в случае чистого СО ($p_{CO} = 0,1$ тор; 1 — P_{VT} описываются кривыми, представленными на рис. 1, 2 — P_{VT} увеличены в 20 раз) и в случае смеси СО — N_2 ($p_{CO} = 0,1$ тор, $p_{N_2} = 2,0$ тор; $T_1^*(N_2) = 1700^\circ K$ (3) и $1732^\circ K$ (4), $T_g = 325^\circ K$, $T_1^*(CO) = 2700^\circ K$).

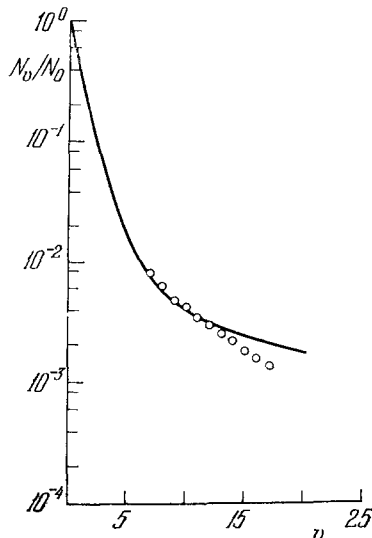


Рис. 19. Сравнение населенностей колебательных уровней, рассчитанных в работе ²³ (сплошная кривая) и измеренных в работе ⁴⁰ (кружки) при температурах $T_g = 325^\circ K$, $T_1^* = 3000^\circ K$ и $p_{CO} = 0,3$ тор.

группы, работа проведена на установке с предварительным возбуждением N_2 высокочастотным разрядом и его последующим смешением с СО (см. также рис. 8 в обзоре ¹). Давления N_2 и СО равнялись 6,0 и 0,3 тор соответственно. К смеси добавлялся O_2 при давлении 0,005 тор. Скорость протока смеси равнялась 13 м/сек. Длина части трубки, заполненной активной средой, равнялась 180 см, длина резонатора — 290 см. Измерения проводились методом калиброванных потерь с помощью вращения плоскопараллельной пластинки из CaF_2 , помещенной в резонатор. По измеренным коэффициентам усиления на 20 колебательно-вращательных линиях ($v = 8-17$, $J = 15-22$) были определены газовая температура, которая оказалась равной $325^\circ K$, и населенности колебательных уровней. Было установлено, что распределение населенностей лазерных уровней СО может быть описано больцмановским распределением с температурой $15\,000^\circ K$, в то время как температура нижних колебательных уровней СО в аналогичных условиях была найдена равной $2000-3500^\circ K$.

Калидония и Сентер ²³ провели расчеты населенностей уровней СО в условиях эксперимента группы Легея, приняв за температуру нижних уровней $3000^\circ K$, что было сделано и в работе ⁴⁰ при сравнении результатов

с трейноровским распределением. Результаты этого расчета, так же как и данные эксперимента, приведены на рис. 19. Как видно из рисунка, имеет место в общем удовлетворительное согласие теории и эксперимента. Однако явно видно, что для высоких колебательных уровней экспериментальные населенности меньше теоретических. Нельзя предложить однозначного объяснения этому расхождению. Из возможных причин укажем только некоторые. Не исключена возможность, что расхождение вызвано ошибками эксперимента, связанными с одновременным измерением населенностей на различных уровнях. Некоторую роль может играть также неоднозначность в выборе колебательной температуры

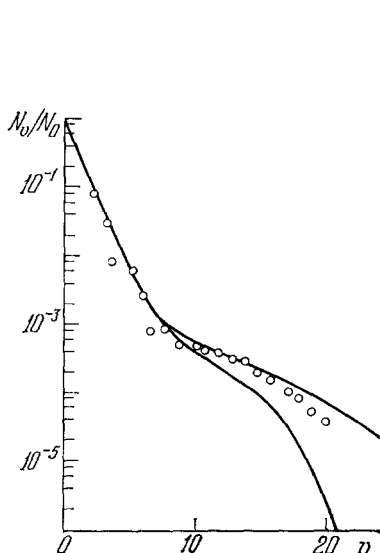


Рис. 20. Сравнение населенностей колебательных уровней, рассчитанных в работе ²³ (сплошные кривые, отличающиеся тем, что верхняя соответствует увеличенным вдвое вероятностям VV-переходов) и измеренных в работе ⁴² (кружки) ($T_1^* = 2500^\circ\text{K}$, $T_g = 350^\circ\text{K}$, $p_{\text{CO}} = 0,08 \text{ тор}$).

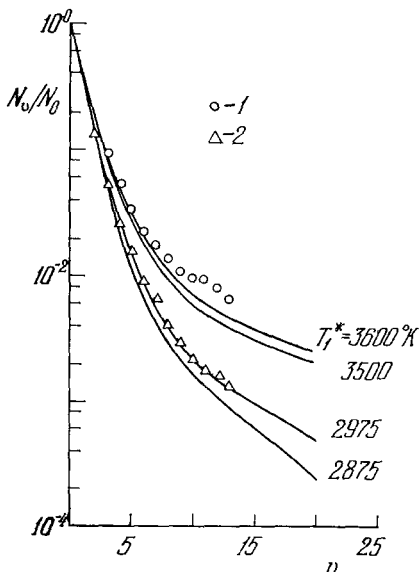


Рис. 21. Сравнение населенностей колебательных уровней, рассчитанных в работе ²³ (сплошные кривые, соответствующие различным значениям T_1^* при $T_g = 350^\circ\text{K}$) и измеренных в работе ⁴¹ (давление CO равно 0,038 тор (1) и 0,056 тор (2)).

нижних уровней и неоднородность активной среды по длине лазера. Весьма вероятно также, что наличие в смеси небольших количеств кислорода приводит к более эффективному разрушению верхних уровней CO, так как первый колебательный квант O_2 по энергии ближе к высоким квантам CO.

Кроме исследований группы Легея, экспериментальному исследованию населенностей уровней CO в смесях CO — N_2 посвящены еще две работы ^{41, 42}, характерной особенностью которых является то, что в них давления CO и N_2 были гораздо меньше давлений, обычно применяемых в рабочих смесях CO — N_2 -лазеров. Так, в работе ⁴² давление $p_{\text{CO}} = 0,08 \text{ тор}$, а в работе ⁴¹ $p_{\text{CO}} = 0,038$ и $0,056 \text{ тор}$ при давлениях $p_{\text{N}_2} = 1,1$ и $1,0 \text{ тор}$ соответственно. В этих работах, так же как и в работе ⁴⁰, N_2 предварительно возбуждался высокочастотным разрядом и затем смешивался с CO. На некотором расстоянии от области смешения в направлении, перпендикулярном направлению движения смеси газов, производилось измерение интенсивности инфракрасного излучения в зависимости от длины волны в области 2,3—2,7 мкм, в которой находится излучение

первого обертона полос СО (от полосы 2—0 до полосы 13—11). Излучение регистрировалось приемником Pb — S при помощи инфракрасного спектрометра со средней дисперсией. При этом вращательная структура была не разрешена и полосы переналагались. Часть полосы 2—0 не переналагалась с другими полосами, и по ней методом подгонки определялась вращательная температура. Точно так же методом подгонки по всем полосам определялись населенности колебательных уровней.

На рис. 20 и 21 проведено сравнение результатов расчетов²³ с данными экспериментов^{41, 42}. На рис. 20 приведены две расчетные кривые, иллюстрирующие влияние изменения вероятностей VV-переходов в два раза. Как видно, увеличение вероятностей переходов вдвое приводит к заметному увеличению населенностей верхних уровней и к лучшему согласию теории и эксперимента, в то время как распределение населенностей на нижних уровнях не изменяется.

Результаты сравнения расчетов с экспериментальной работой⁴¹ представлены на рис. 21 и соответствуют более высоким колебательным температурам T_1^* и более низким давлениям, чем в работе⁴². Расчеты были сделаны при двух колебательных температурах для каждого давления и иллюстрируют чувствительность распределения населенностей к колебательной температуре T_1^* . Видно, что изменение T_1^* на 100 °К приводит к заметному изменению расчетного распределения.

Подводя итог сравнению результатов расчетов с экспериментальными данными, мы можем с определенностью сказать, что в случае комнатных температур имеет место даже лучшее согласие теории и эксперимента, чем при охлаждении активной смеси до азотной температуры. Это и не удивительно, так как при комнатной температуре известны и использованы в расчетах экспериментальные данные о вероятностях столкновительных переходов.

5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

К настоящему времени имеются значительные успехи в разработке и реализации СО-лазеров. Как было указано в обзоре¹, в отпаянном режиме получены мощности порядка 10 *вт*, в прокачанном — 100 *вт* и при модуляции добротности — 10 *квт*. Мы не будем обсуждать здесь возможности различных применений СО-лазеров, так как для этого потребовалась бы отдельная статья. Укажем лишь на чрезвычайную плодотворность использования этого типа лазера для нелинейного преобразования частоты света в результате рассеяния лазерного пучка на кристаллах InSb в магнитном поле⁴³.

Проведенное выше сопоставление результатов расчета и эксперимента с несомненностью указывает на правильность предположений о непосредственной электронной накачке колебательных уровней и о решающей роли ангармоничности при образовании инверсной населенности в СО-лазерах. Однако рассмотренная теория СО-лазера еще не вполне совершенна, так как в ней не учтены некоторые процессы, дающие, по-видимому, определенный вклад в заселение колебательных уровней. К их числу относятся: 1) колебательное возбуждение молекул электронным ударом не только с основного, но и с возбужденных колебательных уровней, 2) дезактивация колебательно возбужденных молекул на стенках газоразрядной трубки, 3) обмен колебательными квантами между молекулами СО в результате тройных столкновений двух молекул СО и атома He. В настоящее время, однако, отсутствуют теоретические и экспериментальные данные о скоростях указанных процессов.

Следует также заметить, что были бы очень желательны непосредственные измерения вероятностей столкновительных колебательно-колебатель-

ных переходов при температуре жидкого азота, так как пока отсутствует критерий надежности использованных в расчетах теоретических значений этих вероятностей. То же самое можно сказать и об измерении концентраций и функций распределения электронов по скоростям при низкой температуре.

Отметим, наконец, что недавно появилась работа ⁴⁴, в которой были проведены расчеты населенностей колебательных уровней СО в режиме генерации. Естественно, что в этом случае абсолютные значения населенностей оказались меньшими, однако небольтцмановский характер распределения сохранился.

Физический институт-им. П. Н. Лебедева
АН СССР

ЦИТИРОВАННАЯ ЛИТЕРАТУРА

1. Н. Н. Соболев, В. В. Соковиков, Квантовая электроника, № 4 (10) 3 (1972).
2. Н. Н. Соболев, В. В. Соковиков, Письма ЖЭТФ 4, 363 (1966); 5, 122 (1967).
3. Н. Н. Соболев, В. В. Соковиков, УФН 91, 425 (1967).
4. N. N. Sobolev, V. V. Sokovikov, сборник «The Physics of Electronic and Atomic Collisions», Boulder, Colorado, 1968.
5. D. C. Tute, Adv. Quantum Electron. 1, 129 (1970).
6. P. K. Cheo, Adv. Lasers 3, 111 (1971).
7. Е. В. Ступоченко, С. А. Лосев, А. И. Осипов, Релаксационные процессы в ударных волнах, М., «Наука», 1965.
8. С. Е. Treanor, J. W. Rich, R. G. Rehm, J. Chem. Phys. 48, 1728 (1968).
9. K. F. Herzfeld, T. A. Litovitz, Absorption and Dispersion of Ultrasonic Waves, N.Y., Academic Press, 1959.
10. D. J. Miller, R. C. Millikan, J. Chem. Phys. 53, 3384 (1970).
11. J. T. Yardley, ibid. 52, 3983.
12. G. Hancock, I. W. M. Smith, Chem. Phys. Letts 8, 41 (1971); Appl. Opt. 10, 1827 (1971).
13. M. Margottin-Maclou, L. Doyennette, L. Henry, ibid., p. 1768.
14. Н. Н. Соболев, В. В. Соковиков, Электронная техника, сер. 3, вып. 4, 3 (1970).
15. Н. Н. Соболев, В. В. Соковиков, В. Н. Стрелец, Кр. сообщ. физ. (ФИАН СССР), № 9, 13 (1971); Н. Н. Соболев, В. В. Соковиков, Препринт ФИАН СССР № 108, Москва, 1971; Н. Н. Соболев, В. В. Соковиков, В. Г. Тараненко, Препринт ФИАН СССР № 34, Москва, 1973.
16. J. W. Rich, J. Appl. Phys. 42, 2719 (1971).
17. J. Kesk, G. Carrier, J. Chem. Phys. 43, 2284 (1965).
18. K. N. C. Bray, J. Phys. B1, 705 (1968).
19. R. C. Millikan, D. R. White, J. Chem. Phys. 39, 3209 (1963).
20. D. Rapp, ibid. 43, 316 (1965).
21. L. D. Landau, E. Teller, Phys. Zs. Sowjetunion 10, 34 (1936).
22. Н. К. Shih, J. Chem. Phys. 55, 5233 (1971).
23. G. E. Caledonia, R. E. Center, ibid., p. 552.
24. M. E. Havey, Thesis (Air Force Institute of Technology, Ohio, 1970).
25. W. Q. Jeffers, J. D. Kelley, J. Chem. Phys. 55, 4433 (1971).
26. R. D. Sharma, C. A. Brau, Phys. Rev. Letts. 19, 1273 (1967); J. Chem., Phys. 50, 924 (1969); 54, 810 (1971); R. D. Sharma, Phys. Rev. 177, 102 (1969).
27. С. С. Пеннер, Количественная молекулярная спектроскопия и излучательная способность газов, М., ИЛ, 1963.
28. G. J. Schulz, Phys. Rev. A135, 988 (1964).
29. М. З. Новгородов, А. Г. Свиридов, Н. Н. Соболев, П. Шварц, Препринт ФИАН СССР № 57, Москва, 1972.
30. R. M. Osgood, Jr., W. C. Eppers, Jr., E. R. Nichols, IEEE J. Quantum Electron. QE-6, 145, 567 (1970).
31. E. R. Fisher, R. H. Kummeler, J. Chem. Phys. 49, 1075, 1085 (1968).
32. C. T. Hsu, L. D. McMillen, ibid. 53, 4107 (1970).
33. K. N. C. Bray, N. H. Pratt, ibid., p. 5987.
34. Б. Ф. Гордиец, А. И. Осипов, Л. А. Шелепин, ЖЭТФ 53, 616 (1970); 60, 102; 61, 562 (1971).

35. Н. Н. Соболев, В. В. Соколов, Кр. сообщ. физ. (ФИАН СССР), № 9, 11 (1972).
 36. M. E. Harey, J. D. Barry, IEEE J. Quantum Electron. QE-7, 370 (1971).
 37. E. N. Lotkova, G. N. Mercer, N. N. Sobolev, Appl. Phys. Lett. 20, 309 (1972); Э. Н. Лоткова, Г. Н. Мерсер, В. Ф. Савченко, Н. Н. Соболев, Препринт ФИАН СССР № 151, Москва, 1972.
 38. М. З. Новгородов, А. Г. Свиридов, Н. Н. Соболев, Препринт ФИАН СССР № 115, Москва, 1971.
 39. C. A. Brau, G. E. Caledonia, R. E. Center, J. Chem. Phys. 52, 4306 (1970); R. E. Center, R. L. Taylor, C. A. Brau, G. E. Caledonia, Proc. of the 6th Intern. Quantum Electronics Conference, 1970.
 40. F. Legay, N. Legay-Sommaire, G. Taieb, Canad. J. Phys. 48, 1949 (1970).
 41. K. P. Horn, P. E. Oettinger, J. Chem. Phys. 54, 3040 (1971).
 42. R. Joeckle, M. Peyron, *ibid.* 67, 1175 (1970).
 43. C. K. N. Patel, Appl. Phys. Lett. 19, 400 (1971).
 44. R. E. Center, G. E. Caledonia, *ibid.*, p. 211.
-