УДК 539.194

НАСЫЩЕНИЕ В МОЛЕКУЛЯРНЫХ СИСТЕМАХ

В. Ф. Папуловский

Рассматриваются вопросы взаимодействия излучения с молекулярной системой. Показано, что в зависимости от соотношения вероятностей, характеризующих колебательную и вращательную релаксацию и вероятности индуцированного излучения, меняется характер насыщения. Получена и проанализирована общая формула для произвольного соотношения вероятностей различных процессов. Результаты анализа приложены к конкретной молекулярной системе — лазеру на CO_2—N_2—He.

Взаимодействие излучения с молекулярными системами имеет целый ряд особенностей, обусловленных наличием релаксации колебательных и вращательных уровней. Характер насыщения молекулярного перехода непосредственно связан с соответствующими временами релаксации.

Задачей данного сообщения является качественный анализ упомянутых связей в рамках вероятностного метода.

Кинетические уравнения для населенностей рабочих уровней в стационарном режиме имеют вид

$$\left.\begin{aligned} \dot{\tilde{n}}_1 &= w_1 (n_1 - \tilde{n}_1) - c\sigma\rho (\tilde{n}_1 - \tilde{n}_2) + F (\bar{n}_1 - \tilde{n}_1) = 0, \\ \dot{\tilde{n}}_2 &= w_2 (n_2 - \tilde{n}_2) + c\sigma\rho (\tilde{n}_1 - \tilde{n}_2) + F (\bar{n}_2 - \tilde{n}_2) = 0, \end{aligned}\right\} \tag{1}$$

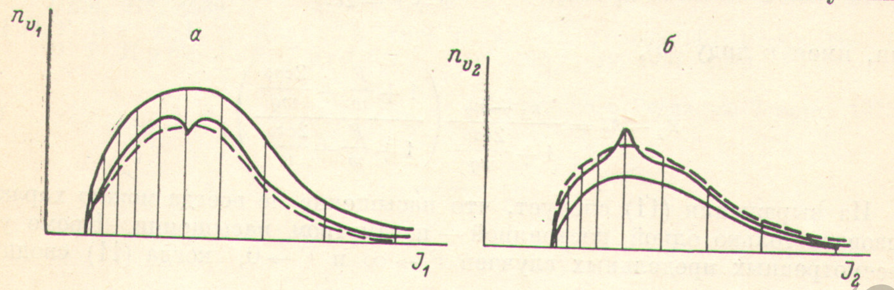
где $\tilde{n}_1$, $\tilde{n}_2$ — населенности верхнего и нижнего рабочих (вращательных) уровней соответственно, n_1, n_2 — стационарные населенности тех же уровней в отсутствие излучения (считаются заданными), $\bar{n}_1$, $\bar{n}_2$ — усредненные населенности вращательных уровней, w_1^{-1}, w_2^{-1} — времена восстановления населенности на данном колебательном уровне. Они зависят от времен колебательной релаксации, времен обмена колебательными квантами между различными колебательными уровнями, времени диффузии молекул в рабочую зону и т. д. F^{-1} — время вращательной релаксации, σ — сечение индуцированного излучения перехода, ρ — плотность излучения, c — скорость света.

Физическая модель, использованная при составлении системы уравнений (1), содержит ряд приближений. Предполагается, что восстановление населенности данного колебательного уровня до стационарного значения можно описать введением только одного характерного времени, кроме того, считается, что времена вращательной релаксации обоих колебательных уровней, которым принадлежат рабочие вращательные уровни, одинаковы. Значение σ относится ко всему вращательному переходу. Вопросы, связанные с насыщением в пределах уширения перехода, не рассматриваются. Все это приводит к тому, что результаты расчетов дают только качественную картину явлений насыщения.

Значения $\bar{n}_i$ связаны со значениями населенности колебательных уровней $\bar{N}_i$ соотношением

$$\bar{N}_i = q_i \bar{n}_i, \tag{2}$$

где $q_i = F(J_i, T)$ — эффективное число вращательных уровней, T — вращательная температура, обычно совпадающая с газовой, J_i — вращательное квантовое число, $i=1,2$. Ввиду того что $J_1/J_2 \approx 1$, можно считать, что $q_1 \approx q_2 \approx q$. Смысл населенностей n_i, $\tilde{n}_i$ и $\bar{n}_i$ можно уяснить из рисунка, где плавная сплошная кривая соответствует стационарному распределению населенностей вращательных уровней n_i в отсутствие излучения, следующая сплошная кривая — то же, но в присутствии излучения, а штриховая кривая — распределение усредненных населенностей вращательных уровней $\bar{n}_i$. В системе уравнений (1) первые члены отражают изменение населенностей уровней вследствие накачки колебательной релаксации и обмена колебательными квантами между различными колебательными уровнями, вторые — влияние излучения,



Распределение населенности вращательных уровней.

а — для верхнего колебательного уровня v_1, *б* — для нижнего колебательного уровня v_2.

третьи описывают процессы вращательной релаксации. Поскольку на населенности колебательных уровней не влияют процессы вращательной релаксации, значения $\bar{N}_i$, а следовательно и $\bar{n}_i$, можно найти из уравнений

$$\left.\begin{aligned} \dot{\bar{N}}_1 &= w_1(N_1 - \bar{N}_1) - (\tilde{n}_1 - \tilde{n}_2)\,c\sigma\rho = 0, \\ \dot{\bar{N}}_2 &= w_2(N_2 - \bar{N}_2) + (\tilde{n}_1 - \tilde{n}_2)\,c\sigma\rho = 0 \end{aligned}\right\} \quad (3)$$

или ввиду (2)

$$\left.\begin{aligned} w_1 q(n_1 - \bar{n}_1) - (\tilde{n}_1 - \tilde{n}_2)\,c\sigma\rho &= 0, \\ w_2 q(n_2 - \bar{n}_2) + (\tilde{n}_1 - \tilde{n}_2)\,c\sigma\rho &= 0. \end{aligned}\right\} \quad (4)$$

Откуда следует, что

$$\left.\begin{aligned} \bar{n}_1 &= \frac{w_1 w_2 q n_1 + (w_1 n_1 + w_2 n_2)\,c\sigma\rho}{w_1 w_2 q + (w_1 + w_2)\,c\sigma\rho}, \\ \bar{n}_2 &= \frac{w_1 w_2 q n_2 + (w_1 n_1 + w_2 n_2)\,c\sigma\rho}{w_1 w_2 q + (w_1 + w_2)\,c\sigma\rho}. \end{aligned}\right\} \quad (5)$$

Разрешим (1) относительно $\tilde{n}_1$, $\tilde{n}_2$ и образуем разность $\tilde{n}_1 - \tilde{n}_2$. Получим

$$\tilde{n}_1 - \tilde{n}_2 = \frac{w_1 w_2 (n_1 - n_2) + F(w_1 n_1 - w_2 n_2) + F(w_2 \bar{n}_1 - w_1 \bar{n}_2) + F^2(\bar{n}_1 - \bar{n}_2)}{(w_1 + F)(w_2 + F) + (w_1 + w_2 + 2F)\,c\sigma\rho}. \quad (6)$$

Рассмотрим предельные случаи.

1. Вращательная релаксация является самым быстрым процессом. Тогда можно положить в формуле (6) $F \to \infty$ и получить, что

$$\tilde{n}_1 - \tilde{n}_2 = \bar{n}_1 - \bar{n}_2 = \frac{n_1 - n_2}{1 + \dfrac{w_1 + w_2}{w_1 w_2 q}\,c\sigma\rho}, \quad (7)$$

2. Вращательная релаксация является самым медленным процессом, $F \to 0$, тогда

$$\tilde{n}_1 - \tilde{n}_2 = \frac{n_1 - n_2}{1 + \dfrac{w_1 + w_2}{w_1 w_2}\,c\sigma\rho}. \quad (8)$$

Сравнение (7) и (8) показывает, что при быстрой вращательной релаксации параметр насыщения $W_{s\infty} = w_1 w_2 q h\nu / (w_1 + w_2)\sigma$ превышает соответствующий параметр при медленной релаксации $W_{s0} = w_1 w_2 h\nu / (w_1 + w_2)\sigma$

в q раз. Этот известный факт [1] связан с тем, что в первом случае излучение влияет на населенности уровней всех q-переходов, тогда как во втором это влияние ограничено одним рабочим переходом. Для исследования общей формулы (6) введем дополнительное предположение о том, что вероятности w_1 и w_2 не очень отличаются друг от друга, т. е.

$$w_1 \approx w_2 \approx w. \tag{9}$$

Тогда получим

$$\tilde{n}_1 - \tilde{n}_2 = \frac{w(n_1 - n_2) + F(\bar{n}_1 - \bar{n}_2)}{w + F + 2c\sigma\rho} \tag{10}$$

или, имея в виду (5),

$$\tilde{n}_1 - \tilde{n}_2 = \frac{n_1 - n_2}{1 + \frac{2c\sigma\rho}{wq}} \left(\frac{1 + \frac{F}{w} + \frac{2c\sigma\rho}{wq}}{1 + \frac{F}{w} + \frac{2c\sigma\rho}{w}} \right). \tag{11}$$

Из выражения (11) следует, что насыщение не всегда можно характеризовать только одной постоянной — параметром насыщения. Кроме уже рассмотренных предельных случаев $F \to \infty$ и $F \to 0$, когда (11) сводится к виду

$$\tilde{n}_1 - \tilde{n}_2 = \frac{n_1 - n_2}{1 + \frac{2c\sigma\rho}{wq}} \tag{7a}$$

и

$$\tilde{n}_1 - \tilde{n}_2 = \frac{n_1 - n_2}{1 + \frac{2c\sigma\rho}{w}}, \tag{8a}$$

практически интересным является случай $F/w \gg 1$, $q \gg 1$.

Тогда

$$\tilde{n}_1 - \tilde{n}_2 = \frac{n_1 - n_2}{\left(1 + \frac{2c\sigma\rho}{wq}\right)\left(1 + \frac{2c\sigma\rho}{F}\right)} \tag{12}$$

и имеется два параметра насыщения. Один связан с колебательной, другой с вращательной релаксацией.

Наконец, при очень большой плотности фотонов, когда $2c\sigma\rho \gg Fq$, справедлива формула

$$\tilde{n}_1 - \tilde{n}_2 = \frac{n_1 - n_2}{\frac{2c\sigma\rho}{w}}, \tag{13}$$

т. е. опять излучение эффективно взаимодействует лишь с одним вращательным переходом.

Сделаем прикидочный расчет параметров насыщения для лазера на смеси CO_2—N_2—He, у которого $w \sim 10^3$ с, $F \sim 10^7$ с, $\sigma \sim 10^{-16}$ см^2, $q \sim 10$, $h\nu = 2 \cdot 10^{-19}$ дж. При малых уровнях мощности излучения следует пользоваться формулой (7а). Параметр насыщения

$$W'_{S\infty} = \frac{wh\nu q}{2\sigma} \approx 10 \text{ вт/см}^2.$$

По порядку величины это совпадает с экспериментально полученными значениями [2].

При плотностях фотонов

$$\rho \sim \frac{F}{2c\sigma} \approx 10^{12} \text{ см}^{-3}$$

следует пользоваться формулой (12). Приведенная плотность фотонов соответствует выходной мощности

$$P = \frac{Sc\sigma\rho h\nu}{2T} \approx 10^4 \text{ вт}$$

при площади поперечного сечения $S=1$ см^2 и коэффициенте пропускания выходного зеркала $T=0.3$. Ввиду того что в настоящее время в квазинепрерывном режиме достигнуты мощности $\sim 10^5$ вт, следует иметь в виду возможность нарушения равновесного распределения населенностей вращательных уровней, т. е. возможность насыщения отдельного вращательного перехода.

Литература

[1] C. P. Christensen, C. Freed, H. A. Haus. IEEE J. Quant. Electr., *QE-4*, 276, 1969.

[2] D. F. Hotz, J. W. Austik, Appl. Phys. Lett., *11*, 60, 1967; Errata ibid., 141. D. F. Hotz, J. N. Ferrer. J. Appl. Phys., *39*, 1797, 1968.

Поступило в Редакцию 7 марта 1973 г.