

ОПРЕДЕЛЕНИЕ ВЕРОЯТНОСТЕЙ СПОНТАННОГО ИЗЛУЧЕНИЯ И КОЭФФИЦИЕНТОВ СТОЛКНОВИТЕЛЬНОГО САМОУШИРЕНИЯ СПЕКТРАЛЬНЫХ ЛИНИЙ МОЛЕКУЛЫ CO_2

Аршинов К.И.¹, Клубович В.В.², Крапивная О.Н.¹, Невдах В.В.²

¹ Институт технической акустики НАН Беларуси, г. Витебск, Республика Беларусь

² Белорусский национальный технический университет, г. Минск, Республика Беларусь

*Представлены методика и результаты одновременного определения вероятности спонтанного излучения A и коэффициента столкновительного самоуширения γ для спектральной линии $R(22)$ перехода 10^00-00^01 молекулы CO_2 по измеренным ненасыщенным коэффициентам поглощения в углекислом газе на центральной частоте этой линии при температуре 300 К и давлениях, обеспечивающих фойгтовский контур линии.
(E-mail: itaaki@yandex.ru)*

Ключевые слова: углекислый газ, коэффициент поглощения, вероятность спонтанного излучения, столкновительное самоуширение спектральной линии.

Введение

Для решения задач переноса излучения в атмосфере, лазерной диагностики атмосферы по определению содержания в ней углекислого газа, определения энергетических характеристик CO_2 -лазеров требуется знание таких спектроскопических параметров молекулы CO_2 , как вероятности спонтанного излучения A и коэффициенты столкновительного самоуширения γ для спектральных линий различных переходов молекулы CO_2 . Однако, даже для наиболее изученной линии $P(20)$ лазерного перехода 10^00-00^01 молекулы CO_2 , приводимые в литературе значения вероятности A лежат в диапазоне $0,1-0,32 \text{ с}^{-1}$, а значения коэффициента γ – в диапазоне $6,51-10,34 \text{ МГц/Тор}$, показывая, что разбросы в значениях этих параметров превышают погрешности измерений отдельных авторов [1, 2]. Сложившееся положение дел предполагает как проведение анализа существующих методик определения данных параметров, так и поиск новых. Следует отметить, что каждый из названных параметров обычно определялся по отдельной методике (см., например, [3]).

Целью настоящей работы была разработка методики одновременного определения вероятности спонтанного излучения A_j и коэффи-

циента столкновительного самоуширения γ_j линии $R(22)$ перехода 10^00-00^01 молекулы CO_2 по результатам измерения ненасыщенных коэффициентов поглощения (КП) в углекислом газе на центральной частоте этой линии при фиксированной температуре и давлениях, обеспечивающих смешанный контур линии.

Методика измерений

Выражение для КП в центре спектральной линии при давлении углекислого газа P_{Ci} имеет вид (полное выражение КП см., например, в [3, 4]):

$$\alpha_i(\nu_0) = S_i \cdot F_i(\nu_0), \quad (1)$$

где ν_0 – центральная частота; $S_i = A \cdot \phi_i$ – сила линии; ϕ_i – функция плотности молекул CO_2 , соответствующих спектроскопическим констант и температуры газа установленного вида; $F_i(\nu_0)$ – форм-фактор в центре линии.

Известно, что при малых давлениях углекислого газа ($P_C \leq 1 \text{ Тор}$) линия поглощения имеет неоднородный или доплеровский контур и величина КП линейно растет при увеличении давления, а при давлениях $P_C > 50 \text{ Тор}$ контур линии поглощения становится однородным, или лоренцевским, и величина КП не

зависит от давления газа. В диапазоне давлений углекислого газа ~ 1-50 Тор уширение линии поглощения молекул CO₂ определяется как столкновениями, так и эффектом Доплера; контур линии является смешанным, или фойгтовским.

В настоящей работе для определения величин A и γ предлагается использовать результаты измерений КП в углекислом газе при давлениях, лежащих именно в этом диапазоне, т.е. когда линия поглощения имеет контур Фойгта. Наиболее простое и достаточно точное (модуль относительной ошибки $\delta < 0,9$ %) аналитическое выражение для фойгтовского фактора в центре линии имеет вид [5]:

$$F(v_0) = 1 / \left[\Delta v_L + \sqrt{\left(\frac{\pi-2}{2}\right)^2 (\Delta v_L)^2 + \frac{\pi}{4 \ln(2)} (\Delta v_D)^2} \right], \quad (2)$$

где $\Delta v_L = \gamma \cdot P_{Ci}$, $\Delta v_D = \frac{2v_0}{c} \sqrt{\frac{2 \ln(2) kT}{M}}$ –

столкновительная и доплеровская ширины линии поглощения (на полувысоте) соответственно; M – масса молекулы CO₂. Из (1) и (2) следует, что измеренным КП при различных давлениях углекислого газа P_{Ci} в указанном диапазоне и фиксированной температуре соответствует система i уравнений, линейных относительно вероятности спонтанного излучения A и нелинейных относительно коэффициента столкновительного уширения γ . Для решения данной системы уравнений необходимо минимизировать относительно искомым параметров $\{A, \gamma\}$ совокупность взвешенных квадратов отклонений измеренных значений КП $\hat{\alpha}_i$ от рассчитанных значений КП $\alpha_i(A; \gamma)$:

$$Z = \sum_{i=1}^n w_i [\hat{\alpha}_i - \alpha_i(A; \gamma)]^2, \quad (3)$$

путем численного сканирования коэффициента столкновительного самоуширения γ с последующим расчетом вероятности спонтанного излучения A из выражения:

$$A = \frac{\sum_i w_i \hat{\alpha}_i \varphi_i F_i(v_0)}{\sum_i w_i [\varphi_i F_i(v_0)]^2}, \quad (4)$$

где w_i – весовой коэффициент i -го измерения.

Таким образом, выбирается та совокупность параметров $\{A, \gamma\}$, которой соответствует минимальное значение Z . Для первой итерации брались весовые коэффициенты $w_i^{(1)} = 1$, а для $(j+1)$ -ой – в виде [6]:

$$w_i^{(j+1)} = \frac{1}{[\hat{\alpha}_i - \alpha_i(A^j, \gamma^j)]^2}. \quad (5)$$

Погрешности искомым параметров определялись путем расчета ковариационных матриц [6, 7]. При многопараметрическом поиске диагональные элементы соответствующей ковариационной матрицы представляют собой дисперсии искомым параметров. В нашем случае ковариационная матрица представляет собой матрицу 2×2 с диагональными элементами $\sigma_A^2, \sigma_\gamma^2$. В общем случае связь между ковариационными матрицами прямо $\{\hat{\alpha}_i\}$ и косвенно $\{A, \gamma\}$ измеряемых величин может быть записана в виде [6, 7]:

$$COV = (b^T COV_\alpha^{-1} b)^{-1}, \quad (6)$$

где b – матрица с элементами $b_{ik} = \frac{\partial \alpha_i}{\partial y_k}$ ($k = 1, 2; y_1 = A, y_2 = \gamma$) в точке квазиразрешения; b^T – транспонированная матрица b . При прямых некоррелированных измерениях КП $\hat{\alpha}_i$ с одинаковым средним квадратичным отклонением измеряемых КП σ_α выражение (6) принимает вид [6, 7]:

$$COV = \sigma_\alpha^2 (b^T b)^{-1}. \quad (7)$$

Выражение (7) связывает точность определения искомым параметров σ_A, σ_γ с точностью измерений входных величин (КП) σ_α .

Результаты измерений, расчетов и их обсуждение

Для проверки предложенной методики с помощью стабилизированного по максимуму контура усиления перестраиваемого CO₂-лазера низкого давления были измерены КП линии R(22) перехода 10⁰0-00⁰1 углекислого газа, находящегося при температуре 300 К, в диапазоне давлений 5–30 Тор. В качестве ил-

люстрации на рисунке 1 в виде кружков представлены результаты измерений КП для двадцати пяти давлений. На этом же рисунке представлен график рассчитанной зависимости КП от давления (сплошная линия) с использованием найденных параметров $A = 0,195 \text{ с}^{-1}$ и $\gamma = 7,53 \text{ МГц/Тор}$. Выбор линии 10R(22) обусловлен тем, что вкладом в КП на ее центральной частоте, который дают линии поглощения других, вышележащих переходов молекулы CO_2 , при рассматриваемых в работе давлениях и температуре, можно пренебречь.

В связи с тем, что квазиурешение фундаментальной системы уравнений (1) зависит от объема выборки измеренных КП, вышеописанная методика использовалась для определения искомых параметров $\{A, \gamma\}$ и их погрешностей σ_A, σ_γ при разном количестве рабочих давлений n .

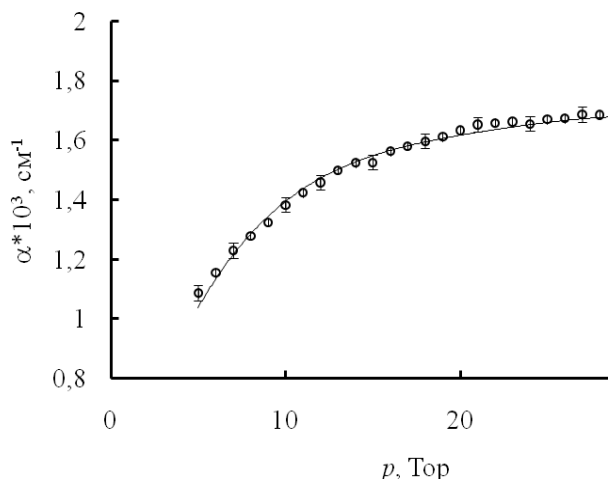


Рисунок 1 – Зависимость от давления коэффициента поглощения для линии R(22) перехода $10^0\text{-}00^0\text{1}$ молекулы CO_2 при температуре 300 К: \circ – эксперимент; сплошная линия – расчет КП для $A = 0,195 \text{ с}^{-1}$ и $\gamma = 7,53 \text{ МГц/Тор}$

На рисунках 2 и 3 представлены значения искомых параметров A и γ соответственно, полученные для разного количества КП n . Видно, что с ростом n характер изменения определяемых параметров одинаков – они асимптотически приближаются к некоторым своим предельным значениям, которые и рассматриваются как искомые значения. На этих же рисунках представлены погрешности определяемых параметров σ_A, σ_γ , рассчитанные в точках квазиурешений в соответствии с выражением (6). При расчетах точность измерения КП принималась $\sigma_\alpha = 2,5 \cdot 10^{-5} \text{ см}^{-1}$ (см. рисунок 1).

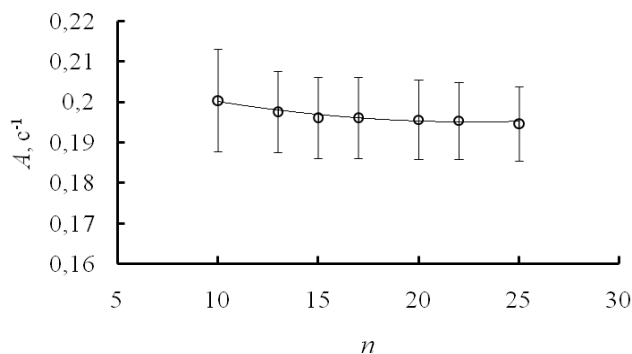


Рисунок 2 – Значения вероятностей спонтанного излучения A , рассчитанные для разного количества измеренных КП чистого CO_2 при температуре $T = 300 \text{ К}$

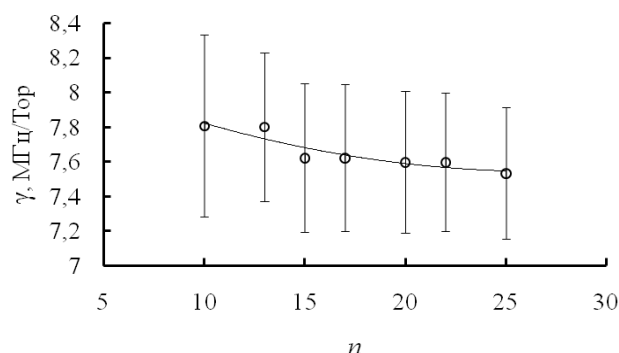


Рисунок 3 – Значения коэффициентов столкновительного самоуширения γ , рассчитанные для разного количества измеренных КП чистого CO_2 при температуре $T = 300 \text{ К}$

Таким образом, применение описанной выше методики к измеренным КП, представленным на рисунке 1, дало следующие результаты определения параметров $\{A, \gamma\}$: $A = 0,195 \pm 0,009 \text{ с}^{-1}$ и $\gamma = 7,53 \pm 0,38 \text{ МГц/Тор}$. Видно, что полученные значения вероятности спонтанного излучения и коэффициента столкновительного самоуширения попадают в известные из литературы диапазоны значений для этих величин. Это обстоятельство можно рассматривать, как подтверждение надежности разработанной методики их определения.

Заключение

С помощью стабилизированного по частоте CO_2 -лазера измерены ненасыщенные коэффициенты поглощения линии R(22) перехода $10^0\text{-}00^0\text{1}$ молекулы CO_2 в чистом углекислом газе при температуре 300 К в диапазоне давлений 5–30 Тор, когда линия поглощения имеет фойгтовский контур. Применение представленной мето-

дики одновременного определения вероятности спонтанного излучения A_{mn} и коэффициента столкновительного самоуширения γ_{mn} для этой линии по измеренным коэффициентам поглощения дало следующие результаты: $A = 0,195 \pm \pm 0,009 \text{ с}^{-1}$ и $\gamma = 7,53 \pm 0,38 \text{ МГц/Тор}$. Полученные значения согласуются с имеющимися литературными данными. Разработанная методика может быть использована также для определения температурных зависимостей спектроскопических параметров линий поглощения.

Список использованных источников

1. Ачасов, О.В. Диагностика неравновесных состояний в молекулярных лазерах / О.В. Ачасов [и др.]. – Минск : Наука и техника, 1985. – 208 с.
2. Стариков, В.И. Столкновительное уширение спектральных линий поглощения молекул атмосферных газов / В.И. Стариков, Н.Н. Лаврентьева ; под общ. Ред. К.М. Фирсова. – Томск : Изд-во Института оптики атмосферы СО РАН, 2006. – 308 с.
3. Невдах, В.В. Определение параметров линий поглощения перехода 10^00-00^01 молекулы CO_2 по измерениям коэффициентов поглощения с помощью перестраиваемого CO_2 -лазера / В.В. Невдах, К.И. Аршинов, М.К. Аршинов // Приборы и методы измерений. – 2010. – № 1. – С. 70–77.
4. Аршинов, К.И. Исследование параметров столкновительно уширенной линии поглощения $R22$ перехода 10^00-00^01 молекулы CO_2 . I. Эксперимент / К.И. Аршинов, М.К. Аршинов, В.В. Невдах // Опт. и спектр. – 2012. – Т. 112. – № 6. – С. 914.
5. Кудря, В.П. Вычисление значения функции Фойгта в центре линии / В.П. Кудря // Опт. и спектр. – 1983. – Т. 55. – № 6. – С. 1113.
6. Мудров, В.И. Методы обработки измерений / В.И. Мудров, В.Л. Кушко. – М. : Радио и связь, 1983. – 304 с.
7. Лешенюк, Н.С. Точностные характеристики диагностики активных сред CO_2 -лазеров по измерениям коэффициентов усиления / Н.С. Лешенюк, В.В. Пашкевич // ЖПС. – 1987. – Т. 46. – № 4. – С. 567.

Arshinov K.I., Klubovich V.V., Krapivnaya O.N., Nevdakh V.V.

Determination of the spontaneous emission probabilities and the collision self-broadening coefficients of the CO_2 spectral lines

The technique of simultaneous determination of the spontaneous emission probabilities A_{mn} and the collision self-broadening coefficients γ_{mn} of the CO_2 spectral lines is presented. The dependence of the absorption coefficient on the gas pressure, obtained for the CO_2 10R22 line at temperature 300 K was measured. Using the data, the spontaneous emission probability A_{mn} and the collision self-broadening coefficient γ_{mn} were calculated. (E-mail: itaaki@yandex.ru)

Key words: carbon dioxide, absorption coefficient, spontaneous emission probability, collision self-broadening coefficient.

Поступила в редакцию 03.06.2013.