

04; 07

© 1990 г.

## ИЗМЕРЕНИЕ ДИНАМИКИ СПЕКТРА ПОГЛОЩЕНИЯ $I^+$ СИСТЕМЫ АЗОТА В ИМПУЛЬСНОМ РАЗРЯДЕ С ПОМОЩЬЮ ИНЖЕКЦИОННОГО ЛАЗЕРА

А. В. Меркулов, А. И. Надеждинский, С. К. Семенов,  
А. Н. Хуснутдинов

Описано применение инжекционных лазеров ближнего ИК диапазона для исследования нестационарной молекулярной плазмы импульсно-периодического газового разряда. Зарегистрирован с высоким спектральным ( $0.004 \text{ см}^{-1}$ ) и временным (70 нс) разрешением спектр поглощения  $I^+$  системы азота, определена динамика концентрации молекул  $N_2(A^3\Sigma_u^+, v=2)$ , при этом максимальное ее значение составляло  $4 \cdot 10^{12} \text{ см}^{-3}$  при минимально обнаружимой концентрации  $5 \cdot 10^9 \text{ см}^{-3}$  на оптической длине 60 см.

В последнее время лазерные методы диагностики все шире применяются в разнообразных исследованиях низкотемпературной плазмы. Внутррезонаторная спектроскопия, КАРС, диодные лазеры среднего ИК диапазона и т. д. обеспечивают необходимое для таких исследований сочетание высокого спектрального и временного разрешения. В качестве примеров могут быть приведены несколько последних публикаций [1-4]. Нам представляется, что перспективным для решения такого типа задач также является применение инжекционных лазеров ближнего ИК диапазона [5]. Лазеры этого типа изготавливаются на основе полупроводников  $A^{III}B^V$  ( $A^{III} = \text{Al, Ga, In}$ ;  $r^V = \text{P, As}$ ) и перекрывают спектральный интервал 0.7—2.2 мкм, в котором располагается значительное количество вибронных полос электронно-возбужденных молекул.

Целью настоящей работы являлось применение инжекционных лазеров ближнего ИК диапазона для диагностики нестационарной молекулярной плазмы. Измерение динамики спектра поглощения  $I^+$  системы азота использовалось для диагностики метастабильного состояния  $A^3\Sigma_u^+$  молекулярного азота, которое играет важную роль в кинетических процессах, происходящих в плазме азотсодержащего разряда. Экспериментальному исследованию поведения населенности состояния  $N_2(A^3\Sigma_u^+)$  в газовом разряде посвящен ряд работ [1, 6-8], в которых использовались разные методы классической и лазерной спектроскопии.

Традиционной методикой является регистрация собственного излучения метастабильного состояния (система Вегарда—Каплана) [6]. Однако таким образом измерить абсолютную концентрацию трудно. Кроме того, поскольку этот переход является запрещенным, а частота его лежит в ближнем УФ диапазоне, то методика оказывается очень чувствительной к паразитным засветкам (примеси в разряде, приэлектродные области и т. д.). Следует отметить также трудность достижения разумного компромисса между чувствительностью и временным разрешением. Альтернативой является абсорбционная спектроскопия перехода  $A^3\Sigma_u^+ \rightarrow B^3\Pi_g(1^+ \text{ система})$ . В [7] излучение  $I^+$  системы от одной разрядной трубки пропускалось через другую (метод «самопоглощения»), что позволило измерить абсолютную концентрацию  $N_2(A^3\Sigma_u^+)$  в стационарных условиях. В [8], где использовалась кинетическая абсорбционная спектроскопия, удалось достичь высокого временного разрешения, однако удовлетворительная чувствительность была достигнута только за счет специфических условий создания метастабильных состояний (электронный пучок); вращатель-

ная структура не была разрешена. Применение такой мощной методики, как КАРС, в данном случае ограничено ее чувствительностью, которая составляет  $10^{14}$  см $^{-3}$ , поскольку концентрация молекул азота в электронно-возбужденных состояниях, как правило, существенно меньше чем  $10^{14}$  см $^{-3}$ .

В [1] был применен метод внутррезонаторной спектроскопии с использованием широкополосного лазера на красителе. Чувствительность к резонансному поглощению этого метода зависит от длительности импульса генерации лазера, в данном случае для регистрации концентрации  $N_2$  ( $A^3 \Sigma_u^+, v''$ ) на уровне  $\sim 10^{12}$  см $^{-3}$  потребовался импульс длительностью 8 мкс, при этом измерялось поглощение в группе ( $\sim 10$ ) неразрешенных линий. Следует отметить небольшой динамический диапазон измеряемого поглощения (около 5) и трудоемкость данной методики.

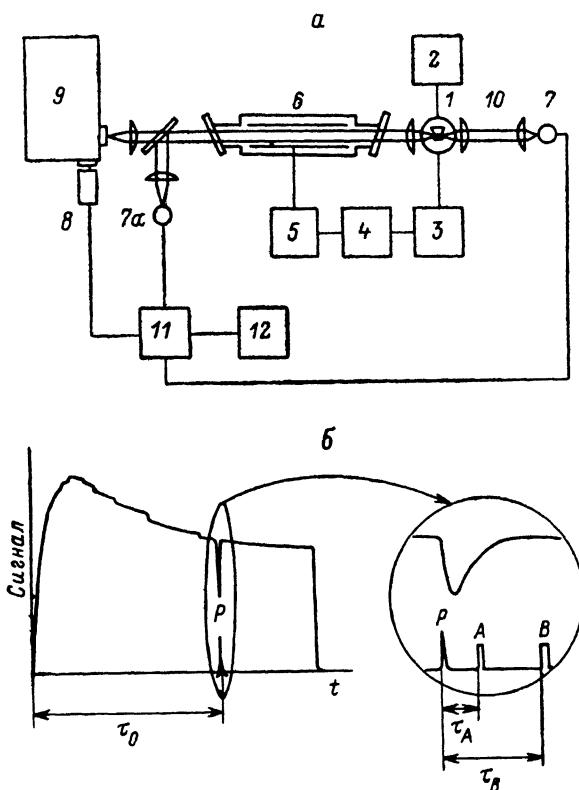


Рис. 1. Схема спектрометра (а) и принцип регистрации сигнала (б).

а: 1 — криостат с инжекционным лазером, 2 — регулятор температуры, 3 — источник импульсов тока накачки лазера, 4 — блок формирования задержки  $\tau_d$ , 5 — блок питания разряда, 6 — разрядная камера, 7 — фотодиоды, 8 — ФЭУ-62, 9 — монохроматор, 10 — интерферометр Фабри-Перо, 11 — стробинтегратор, 12 — самописец.

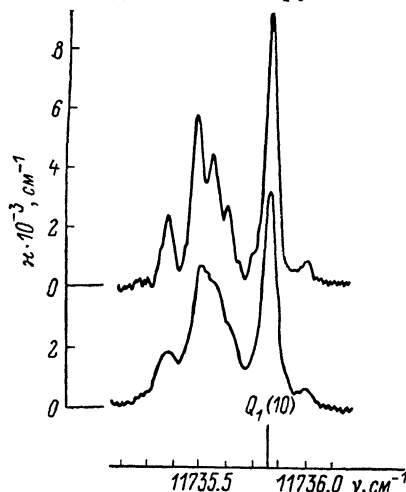
Нами была реализована регистрация полностью разрешенного спектра перехода  $A^3 \Sigma_u^+, v=2 \rightarrow B^3 \Pi_g, v=3$  молекулярного азота, что позволило измерить динамику населенности  $A^3 \Sigma_u^+, v=2$  с чувствительностью  $5 \cdot 10^9$  см $^{-3}$  (на длине 60 см), при этом временное разрешение составляло 70 нс.

Объектом изучения был самостоятельный импульсно-периодический поперечный разряд в азоте нулевой частоты с ультрафиолетовой предионизацией. Длительность импульса тока через разряд составляла 300 нс (по основанию), напряжение 25—30 кВ, энерговыход до 100 Дж/л·атм, частота повторения импульсов до 10 Гц. Длина разрядного промежутка 60 см, зазор 2 см, рабочее давление 50—300 Тор.

Блок-схема экспериментальной установки представлена на рис. 1. В данной работе использовались полосковые одночастотные гомолазеры на основе GaAs [9], работающие при температурах ниже 150 К. Лазер помещался в кри-

стат, снабженный системой стабилизации температуры, позволяющей выбрать любую рабочую температуру в диапазоне от 30 до 300 К и поддерживать ее с точностью на уровне  $10^{-3}$  К [10]. Питание лазера осуществлялось прямоугольными импульсами тока стабильной амплитуды с частотой повторения 10 Гц. Излучение, выходящее из обеих граней лазерного кристалла, коллектировалось и образовывало два плеча спектрометра. В одном из них помещалась разрядная камера, в другой — интерферометр Фабри—Перо, который служил для определения частотного масштаба регистрируемого участка спектра. Монохроматор был нужен для грубой привязки спектра по частоте. В качестве приемников излучения использовались  $p-i-n$ -фотодиоды и ФЭУ-62.

Электрический разряд в газе являлся источником значительных оптических и радиочастотных помех. Собственное оптическое излучение разряда устранялось с помощью интерференционного фильтра и монохроматора. Питание лазера осуществлялось с помощью электрической батареи. Амплитуда тока накачки задавалась нагрузочным сопротивлением, а внешний синхроимпульс задавал начало и длительность импульса накачки. Такая система питания исключала проникновение наводок от разряда в ток лазера. Данное обстоятельство принципиально для реализации высокого спектрального разрешения, поскольку появление наводок в токе вызывает флуктуации частоты лазера и, следовательно, ухудшение разрешения. Наводка на приемную аппаратуру была заметна только в течение 1 мкс после разряда, а ее величина не превышала 10 % регистрируемого сигнала. В ряде экспериментов использовалась оптиче-



задавал начало и длительность импульса накачки. Такая система питания исключала проникновение наводок от разряда в ток лазера. Данное обстоятельство принципиально для реализации высокого спектрального разрешения, поскольку появление наводок в токе вызывает флуктуации частоты лазера и, следовательно, ухудшение разрешения. Наводка на приемную аппаратуру была заметна только в течение 1 мкс после разряда, а ее величина не превышала 10 % регистрируемого сигнала. В ряде экспериментов использовалась оптиче-

Рис. 2. Участок спектра коэффициента поглощения  $I^+$  системы азота  $\kappa$ , зарегистрированный спустя 300 нс после окончания импульса тока разряда.

ская линия задержки (3 мкс) на волоконном световоде, что позволяло регистрировать оптический сигнал тогда, когда электрическая наводка уже исчезла.

Работа спектрометра показана на рис. 1, б. В течение импульса тока накачки происходит разогрев активной области инжекционного лазера, что сопровождается сканированием его частоты. Таким образом, каждому моменту времени  $t$  после начала импульса тока накачки соответствует определенная частота генерации. Скорость сканирования частоты излучения  $(\partial\nu)/(\partial t)$  плавно уменьшается в течение импульса тока накачки, что позволяло выбрать необходимую величину  $(\partial\nu)/(\partial t)$  в диапазоне  $0-10^6$   $\text{см}^{-1}/\text{с}$ . Разряд в газовой камере (импульс  $P$  на рис. 1, б) был синхронизован с импульсом тока накачки лазера и происходил через регулируемое время  $\tau_0$  после его начала. При этом после разряда возникало резонансное поглощение, связанное с исследуемым переходом (рис. 1, б). Регистрация сигнала производилась методом стробоскопического интегрирования. При этом сигнал, измеряемый во временном окне строба  $B$ , использовался в качестве опорного при аналоговой обработке, так что напряжение на выходе стробинтегратора  $u = -\ln P_A/P_B$  было пропорционально коэффициенту поглощения в момент времени  $t = \tau_0 + \tau_A$ , определяемый задержкой строба  $A$ . При этом фиксированная задержка  $\tau_B$  выбиралась так, что поглощение в этот момент времени уже отсутствовало. Запуск системы регистрации производился по сигналу опорного фотоприемника (7а на рис. 1, а) собственного излучения разряда. Установка позволяла производить измерения двух типов. Для регистрации протяженных участков спектра  $\tau_A$  фиксируется, а величина задержки  $\tau_0$  плавно изменяется (рис. 2). При этом  $\tau_A$  определяет время между началом разряда и моментом регистрации. Каждой точке полученного таким образом спектра соответствует одна и та же временная задержка  $\tau_A$  после начала разряда. Возможна также регистрация динамики поглощения в узком

участке спектра, например в центре изолированной линии (рис. 3). Для этого скорость сканирования частоты излучения устанавливалась достаточно малой ( $(\partial\nu)/(\partial t) \ll (\Delta\nu_x/\tau)$ , где  $\Delta\nu_x$  — ширина исследуемой линии,  $\tau$  — время релаксации населенности исследуемого состояния).

Описанными методами были получены спектры перехода  $A^3\Sigma_u^+$ ,  $v=2 \rightarrow B^3\Pi_g$ ,  $v=3$  в спектральном интервале 11720—11800  $\text{см}^{-1}$ , диапазоне равновесных давлений 50—300 Тор, для различных напряжений на разрядном промежутке. В качестве примера на рис. 2 показан фрагмент спектра в окрестности

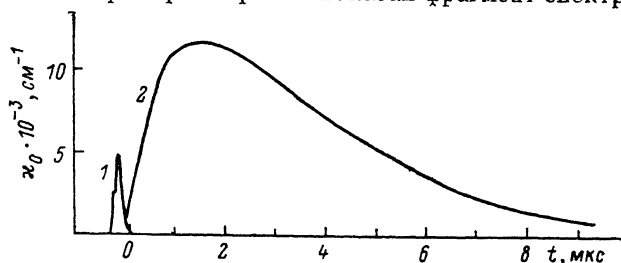


Рис. 3.

1 — ток разряда (произв. ед.), 2 — динамика коэффициента поглощения в центре линии  $Q_1(12)$ . Максимуму поглощения соответствует концентрация молекул  $N_2(A^3\Sigma_u^+, v=2) 4 \cdot 10^{12} \text{см}^{-3}$ .

11735.5  $\text{см}^{-1}$ . Динамика спектров исследовалась при задержках от 0.1 до 10 мкс относительно начала разряда. За эти времена концентрация молекул азота не успевает измениться, поскольку время, характеризующее газодинамические процессы в разрядной камере, значительно больше. Поэтому в дальнейшем будет приводиться величина равновесного давления.

На рис. 3 приведена динамика поглощения в центре одной из линий. Характерное время столкновительного тушения состояния  $B^3\Pi_g$  не превышает 100 нс во всем диапазоне изменения давления, поэтому населенность нижнего уровня  $A^3\Sigma_u^+$ ,  $v=2$  непосредственно связана с измеряемым коэффициентом поглощения в центре линии  $x_0$  следующим соотношением [11]

$$N_{A, v=2} = \frac{4\pi^2 k T \delta \exp(F(N)/kT)}{\lambda^2 B \Phi_N A_{v'v''} S_{j'j''}} x_0,$$

где  $N$  и  $J$  — вращательный и полный моменты соответственно,  $\delta$  — полуширина линии (бралась из эксперимента),  $S_{j'j''}$  — факторы Хенля—Лондона,  $\Phi_N = 2/3$  для четных  $N$  и  $1/3$  для нечетных и учитывает вырождение за счет спина ядра,  $A_{v'v''}$  — вероятность колебательного перехода (бралась из [12]),  $F(N, J) \approx E(N, J)$  — энергия уровня с квантовыми числами  $N$  и  $J$ ,  $\lambda$  — длина волны перехода,  $B$  — вращательная постоянная.

Константы, характеризующие вращательную структуру, брались из [13]. При этом максимуму поглощения на рис. 3 соответствует полная концентрация молекул азота на колебательном уровне  $v=2$  электронного метастабильного состояния  $A^3\Sigma_u^+$ , равная  $4 \cdot 10^{12} \text{см}^{-3}$ . Минимальное обнаружимая концентрация для оптической длины 60 см составила  $5 \cdot 10^9 \text{см}^{-3}$ .

Максимум населенности (рис. 3) достигается после окончания импульса тока разряда. Это значит, что заселение уровня  $A^3\Sigma_u^+$ ,  $v=2$  происходит не в результате прямого электронного удара, а каскадно, с более высокого колебательного уровня  $A^3\Sigma_u^+$ . Высокое спектральное разрешение метода позволяет регистрировать практически без искажений доплеровский контур линии, исследовать столкновительное уширение. На рис. 4 для одной из линий (отмечена на рис. 2) представлена зависимость ширины на полувысоте от давления азота. Определенное из этих данных сечение столкновительного уширения составило

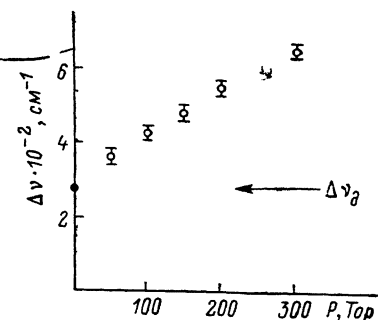


Рис. 4. Зависимость ширины линии на полувысоте от давления для линии  $Q_1(10)$ .

$(36 \pm 2) \text{ \AA}^2$ . Полуценное экспериментальное значение доплеровского уширения  $3.1 \cdot 10^{-2} \text{ см}^{-1}$  оказалось достаточно близким к расчетному значению для комнатной температуры  $2.74 \cdot 10^{-2} \text{ см}^{-1}$ . Во всем интервале изменения задержек в эксперименте было обнаружено, что отношение интенсивностей различных линий и их ширины в пределах 5 % не изменяются. Отсюда можно сделать вывод, что поступательная и вращательная температуры близки к комнатной и в течение 10 мкс после импульса разряда не испытывают заметных изменений.

Таким образом, в настоящей работе описано применение инжекционных лазеров ближнего ИК диапазона для исследования нестационарной молекулярной плазмы импульсно-периодического газового разряда. Зарегистрирован с высоким спектральным ( $0.004 \text{ см}^{-1}$ ) и временным (70 нс) разрешением спектр поглощения  $I^+$  системы азота, определена динамика концентрации молекул  $N_2 (A^3 \Sigma_u^+, v=2)$ , при этом максимальное ее значение составляло  $4 \cdot 10^{12} \text{ см}^{-3}$  при минимально обнаружимой концентрации  $5 \cdot 10^9 \text{ см}^{-3}$  на оптической длине 60 см.

В заключение авторы выражают благодарность Ю. С. Акишеву, И. А. Косому, С. М. Никифорову, А. М. Омельянчуку, А. И. Ушакову и К. Н. Фирсову за помощь в эксперименте и плодотворное обсуждение.

#### Список литературы

- [1] Богатов Н. А., Гатлин М. С., Голубев С. В., Разин С. В. Препринт ИПФ. № 219. Горький, 1988.
- [2] Смирнов В. В., Фабелинский В. И. // Письма в ЖЭТФ. 1979. Т. 28. С. 46—48.
- [3] Saykally R. J. // Science. 1988. Vol. 239. 4836. P. 157—161.
- [4] Kanamori H., Hirota E. // J. Chem. Phys. 1987. Vol. 87. P. 73.
- [5] Ku R. T., Werdeyen J. T., Cherrington B. E., Eden J. G. // Phys. Rev. A. 1973. Vol. 8. P. 3123—3126.
- [6] Голубовский Ю. Б., Тележко В. М. // Теплофизика высоких температур. 1984. Т. 22. С. 996—998.
- [7] Cernogora G., Hochard L., Touzeau M., Ferreira C. M. // J. Phys. B. 1981. Vol. 14. P. 2977—2981.
- [8] Dreier J. W., Perner D. // J. Chem. Phys. 1973. Vol. 53. P. 1195—1202.
- [9] Малахова В. И., Ривлин Л. А., Тамбиев Ю. А., Якубович С. Д. // Квантовая электроника. 1980. Т. 7. С. 1252—1254.
- [10] Косичкин Ю. В., Котлов Ю. Н., Крюков П. В. и др. // ПТЭ. 1983. № 4. С. 228—231.
- [11] Tatam J. B. // Astrophys. J. Suppl. 1967. Vol. 16. 124. P. 21—42.
- [12] Lofthus A., Krupenie P. H. // J. Phys. Chem. Ref. Data. 1977. Vol. 16. P. 113—187.
- [13] Roux F., Michaud F., Verges J. // J. Molec. Spectr. 1983. Vol. 97. P. 253—262.

Институт общей физики АН СССР  
Москва

Поступило в Редакцию  
10 февраля 1989 г.