

- электронной эмиссии и направлением спонтанной поляризации ниобата лития.— Радиотехника и электроника, 1975, 20, № 5, 1113—1115.
4. Девятков М. Н., Ктиторов В. И., Самсонов Ю. И. Вторичная электронная эмиссия ниобата лития.— Изв. АН СССР. Сер. физическая, 1976, 40, № 12, 2604—2608.
 5. Селюк Б. В. Поверхностные уровни сегнетоэлектрических кристаллов.— Кристаллография, 1974, 19, № 2, 221—227.
 6. Стригущенко И. В., Дмитриев С. Г., Силантьева О. В. Влияние спонтанной поляризации на термоэмиссию ниобата лития.— Физ. тв. тела, 1977, 19, № 7, 2001—2005.
 7. Иванчик И. И. К макроскопической теории сегнетоэлектриков.— Физ. тв. тела, 1961, 3, № 12, 3731—3742.
 8. Гуро Г. М., Иванчик И. И., Ковтонюк Н. Ф. Полупроводниковые свойства сегнетоэлектриков.— Письма в редакцию ЖЭТФ, 1967, 5, № 1, 9—12.

Поступила в редакцию
27.06.78

ВЕСТН. МОСК. УН-ТА. СЕР. 3. ФИЗИКА. АСТРОНОМИЯ, 1980, Т. 21, № 4

УДК 533.72

В. Н. БАРАКИН, В. М. ГОРДИЕНКО

ГИДРОДИНАМИЧЕСКИЕ ЭФФЕКТЫ В ПРОЦЕССАХ РЕЛАКСАЦИИ КОЛЕБАТЕЛЬНОЙ ЭНЕРГИИ

Достижения в области фотохимии молекул стимулировали интерес к теоретическому и экспериментальному исследованию релаксационных процессов [1]. Одним из основных методов экспериментального определения времени колебательно-поступательного энергетического обмена при резонансном возбуждении колебаний молекул световыми пучками является интерферометрический [2]. Измеряемая при этом временная зависимость плотности среды отражает динамику процесса термализации энергии. Однако колебательный характер установления давления среды вследствие неоднородного нагрева ведет к нарушению линейной связи изменений плотности и энергии, перешедшей в тепло. Это обстоятельство может приводить к некорректной интерпретации экспериментальных результатов. Отметим, что используемый в этих же целях оптико-акустический метод обладает аналогичными особенностями [3].

Рассмотрим роль гидродинамических эффектов в процессах релаксации колебательной энергии.

В пренебрежении вязкостью и теплопроводностью уравнения, описывающие малые изменения плотности и температуры молекулярного газа при его нагреве излучением, на временах $t \sim \tau_{\text{эв}} \ll \tau_T$ имеют вид [4]:

$$\frac{\partial^2 \rho'}{\partial t^2} - \frac{c_0^2}{\gamma} \Delta (\rho' + \rho_0 \beta T') = 0, \quad (1)$$

$$\frac{\partial T'}{\partial t} - \frac{\gamma - 1}{\beta \rho_0} \frac{\partial \rho'}{\partial t} = \frac{\gamma \Phi}{c_p \rho_0}, \quad (2)$$

где $\rho' = \rho - \rho_0$ — отклонение плотности от равновесного значения ρ_0 , T' — изменение температуры среды, Φ — поток энергии из колебательных в поступательные степени свободы, определяемый из кинети-

ческих уравнений, $\tau_{зв} = a/C_0$, a — поперечный размер светового пучка, C_0 — скорость звука, $\tau_T = a^2/\chi$, χ — коэффициент температуропроводности, β — коэффициент объемного расширения, c_p — изобарная теплоемкость, γ — адиабатическая постоянная.

Для сред, слабо поглощающих излучение ($\alpha^{-1} \gg a$, α — коэффициент поглощения), можно пренебречь перемещением вещества вдоль оси светового пучка. Тогда, заменяя трехмерные лапласианы поперечными, из (1) и (2) получим

$$\frac{\partial^2 \rho'(r', \tau)}{\partial \tau^2} - \Delta_{\perp} \rho'(r', \tau) = \Delta_{\perp} \frac{\beta \tau_{зв}}{c_p} \int_0^{\tau} \Phi(r', t') dt'. \quad (3)$$

Здесь $\tau = t/\tau_{зв}$, $r' = r/a$ — безразмерные временная и пространственная полярная координаты, причем $r' = 0$ соответствует оси возбуждающего светового пучка.

Из-за неоднородного по сечению пучка нагрева вещества возникает акустическая волна сжатия, распространяющаяся в менее нагретые области и выравнивающая давление в среде. Расчеты показывают, что в приосевой части давление устанавливается через $(2-3) \tau_{зв}$, после чего плотность ρ' изменяется пропорционально энергии E_T , перешедшей в тепло:

$$\rho'(r' = 0, \tau) = \frac{\beta \tau_{зв}}{c_p} E_T(r' = 0, \tau) \quad E_T(r', \tau) = \int_0^{\tau} \Phi(r', t') dt'. \quad (4)$$

Инерционность движения вещества проявляется в запаздывании изменений плотности по сравнению с термализуемой энергией E_T при $t \ll \tau_{зв}$, а затем в превышении соответствующего значения, определяемого формулой (4) при $\tau_{зв} \leq t \leq (2-3) \tau_{зв}$.

Таким образом, использование линейной связи плотности ρ' и термализуемой энергии E_T возможно лишь после установления давления в среде.

Рассмотрим метод определения скорости колебательно-поступательной релаксации из временной зависимости изменений плотности среды.

Предположим, что процесс термализации описывается одной постоянной времени τ_p . Тогда в гармоническом приближении кинетическое уравнение для запаса квантов ε в моде примет следующий вид [1]:

$$\frac{d\varepsilon}{dt} = -\frac{\varepsilon - \varepsilon^0}{\tau_p} + \frac{\sigma I}{\hbar \omega}; \quad \varepsilon \ll 1, \quad (5)$$

$$\Phi = N_0 \hbar(\omega) \frac{\varepsilon - \varepsilon^0}{\tau_p}, \quad (6)$$

где σ — сечение поглощения излучения с интенсивностью I на частоте ω , соответствующей переходу между колебательными энергетическими уровнями молекулы, N_0 — число молекул в единице объема.

При аппроксимации возбуждающего светового импульса выражением

$$I(r', t) = I_0 e^{-(r')^2} \begin{cases} e^{-t/\tau_n}, & t > 0 \\ 0, & t < 0 \end{cases}$$

решение уравнений (3), (5), (6) имеет вид

$$\rho'(r', \tau) = \frac{\alpha\beta I_0}{c_D C_0^2} \frac{\tau_p' \tau_{зв}}{(\tau_p' - \tau_H')} \left\{ \int_0^{\infty} J_0(kr') e^{-k^2/4} \left[\left(\frac{\tau_p' e^{-\frac{\tau}{\tau_p'}}}{1 + k^2 \tau_p'^2} - \frac{\tau_H' e^{-\frac{\tau}{\tau_H'}}}{1 + k^2 \tau_H'^2} \right) + \right. \right. \\ \left. \left. + \sin(k\tau) \left(\frac{k^2(\tau_H'^2 - \tau_p'^2)}{(1 + k^2 \tau_H'^2)(1 + k^2 \tau_p'^2)} \right) + \cos(k\tau) \times \right. \right. \\ \left. \left. \times \left(\frac{\tau_H'}{1 + k^2 \tau_H'^2} - \frac{\tau_p'}{1 + k^2 \tau_p'^2} \right) \right] dk + [e^{-r'^2} (\tau_H'(1 - e^{-\frac{\tau}{\tau_H'}}) - \right. \\ \left. \left. - \tau_p'(1 - e^{-\frac{\tau}{\tau_p'}}))] \right\}, \quad (7)$$

где τ_p' , τ_H' — нормированные на $\tau_{зв}$ время релаксации τ_p и длительность светового импульса τ_H .

Интеграл в формуле (7) описывает акустическую волну сжатия, выравнивающую давление в среде, а второй член в (7) связан с квазистатическим изменением плотности при нагреве и повторяет временной ход обмена энергией между колебательными и поступательными степенями свободы (формула (4)).

Обычно при обработке экспериментальных результатов время релаксации вычисляется из зависимости $\rho'(t)$ по формуле

$$\tilde{\tau}_p(t) = \frac{t}{\ln [(\rho_{ст}' - \rho'(0))/(\rho_{ст}' - \rho'(t))]}, \quad (8)$$

где $\rho_{ст}'$ — установившееся значение плотности.

Определим область применимости этой формулы. Для этого, задав постоянные τ_p , $\tau_{зв} \gg \tau_H$ на ЭВМ вычисляли зависимость $\rho'(t)$ по формуле (7), а затем $\tilde{\tau}_p(t)$ по формуле (8). Результаты расчетов, представленные на рис. 1, показывают, что при $t \leq \tau_{зв}$ $\tilde{\tau}_p(t)$ существенно отклоняется от постоянной величины τ_p , а при $t \geq 2\tau_{зв}$ величина $\tilde{\tau}_p(t)$ довольно близка к τ_p . Но при извлечении времени релаксации из экспериментальной зависимости $\rho'(t)$ имеется и другое ограничение: при $t > 2\tau_p$ сильно возрастают ошибки вычисления τ_p по формуле (8) из-за неточности измерения малых величин $(\rho'(t) - \rho_{ст}')$. Таким образом, корректное определение τ_p из временной зависимости плотности возможно при $2\tau_{зв} \leq t \leq 2\tau_p$.

Если $\tau_p \leq \tau_{зв}$, то формула (8) для вычисления τ_p не применима, и единственным способом его определения остается сравнение экспериментальной зависимости $\rho'(t)$ с рассчитанными на ЭВМ кривыми $\rho'(t)$, полученными из кинетических уравнений, в которых τ_p задается как параметр, и волнового уравнения (3).

Для демонстрации возможностей этого способа измерялось время $(V-T)$ -релаксации в SF_6 . Колебания моды ν_3 молекул SF_6 резонансно возбуждались. Изменения плотности газа при термализации поглощенной энергии регистрировались с помощью интерферометра Майкельсона. Для реализации условия $\tau_p \sim \tau_{зв}$ давление SF_6 в эксперименте было около $7 \cdot 10^2$ Па. Интенсивности возбуждающего излуче-

ния выбирались такими, чтобы не проявлялись нелинейные эффекты в процессе колебательно-поступательной релаксации [5].

На рис. 2 экспериментальная кривая 3 для плотности $\rho'(t)$ заключена между двумя теоретическими 1, 2, которые соответствуют $\tau_p = 19$ и 21 мкс, что позволяет определить время релаксации. В данном случае оно составляет $\tau_p = (20 \pm 1)$ мкс, что согласуется с известными значениями из работы [6]. Для сравнения на этом же рисунке приведена временная зависимость для плотности энергии, переходящей в тепло (кривая 4), рассчитанная из (5) и (6) при $\tau_p = 20$ мкс.

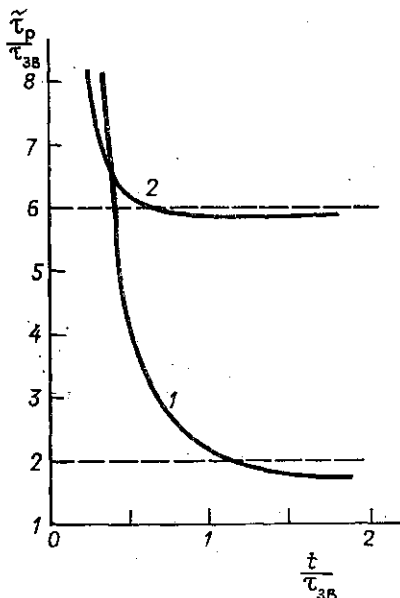


Рис. 1. Зависимости времени релаксации от времени, полученные из рассчитанных на ЭВМ кривых изменений плотности: 1 — при $\tau_p = 2\tau_{3\Omega}$, 2 — при $\tau_p = 6\tau_{3\Omega}$

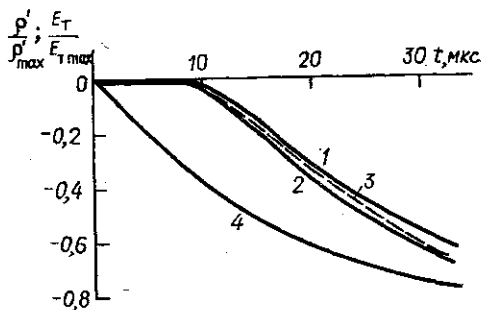


Рис. 2. Временные зависимости плотности газа и термализуемой энергии в процессе $(V-T)$ -релаксации

Эту методику можно распространить и на более сложные релаксационные процессы, определяемые несколькими характерными временами. Нами изучалось кинетическое охлаждение смеси $\text{CO}_2\text{—N}_2$ газов. Уравнения, описывающие этот эффект, в обозначениях работы [7] имеют вид

$$\frac{d\varepsilon_1}{dt} = (\mathcal{P} + W) x_{\text{CO}_2}, \quad (9)$$

$$\frac{d\varepsilon_2}{dt} = -3\mathcal{P} - 2W - p_{20} (\varepsilon_2 - \varepsilon_2^0), \quad (10)$$

$$\Phi = N_0 x_{\text{CO}_2} \{ E_{010} p_{20} (\varepsilon_2 - \varepsilon_2^0) - (E_{001} - 3E_{010}) \mathcal{P} \}, \quad (11)$$

$$\mathcal{P} = \frac{p_{3\Sigma}}{8} \left\{ \exp\left(\frac{3E_{010} - E_{001}}{kT}\right) \varepsilon_2^3 (1 + \varepsilon_1) - \varepsilon_1 (2 + \varepsilon_2)^3 \right\},$$

$$W = \frac{\sigma I}{E_{001} - E_{100}} \left\{ \frac{4\varepsilon_2^2 (1 + \varepsilon_2)}{(2 + \varepsilon_2)^4} - \frac{\varepsilon_1}{(1 + \varepsilon_1)^3} \right\},$$

где ε_1 — запас квантов в асимметричной моде CO_2 и колебаниях N_2 ; ε_2 — аналогичная величина для объединенных симметричной и деформационной мод CO_2 ; p_3 — вероятность трехквантового распада состояния $\text{CO}_2(001)$; p_{20} — вероятность $(V-T)$ -релаксации энергии деформационной моды; x_{CO_2} — концентрация CO_2 в смеси.

Рассчитанная из уравнений (9)—(11) зависимость плотности переходящей в тепло энергии $E_T = \int_0^t \Phi(t') dt'$ характеризуется временами

достижения наибольшего охлаждения t_{\max} (соответствует минимуму $E_T(t)$) и существования охлажденного состояния $t_{\text{сущ}}$ (определяется из $E_T(t) = 0$). В эксперименте измеряемыми величинами являются времена достижения максимальной плотности (на оси пучка) и прохождения через равновесное ее значение. Равенство соответствующих времен, определяемых из опыта и рассчитанных из (9)—(11), имеет место только при узком возбуждаемом световом пучке.

$$a/C_0 = \tau_{\text{зв}} \ll t_{\max}, t_{\text{сущ}}.$$

Если указанное условие не выполняется, то при сопоставлении экспериментальных и теоретических результатов необходимо учитывать инерционность перераспределения вещества, т. е. обязательно использовать волновое уравнение (3) для связи характерных времен зависимостей $E_T(t)$ и $\rho'(t)$.

На рис. 3 для случая $\tau_{\text{зв}} \sim t_{\max}$, $t_{\text{сущ}}$ приведены зависимости $\rho'(t)$: экспериментальная кривая 3, рассчитанная из уравнений (9)—(11),

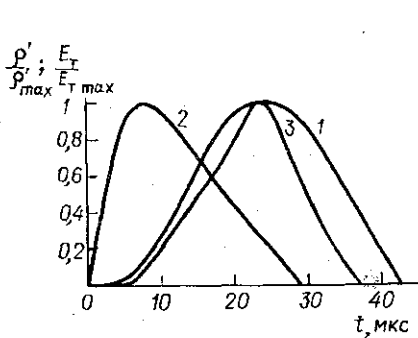


Рис. 3. Временные зависимости плотности и термализуемой энергии при кинетическом охлаждении смеси $\text{CO}_2\text{—N}_2$ газов световым пучком с гауссовым профилем

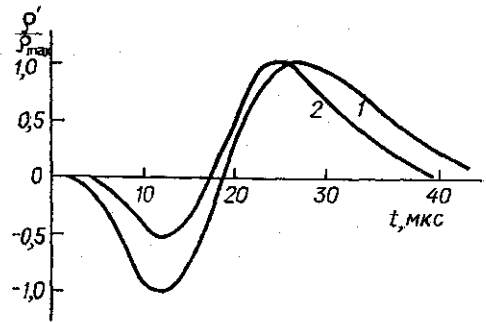


Рис. 4. Зависимости от времени плотности при кинетическом охлаждении смеси $\text{CO}_2\text{—N}_2$ газов под действием светового пучка сложной формы (провал в центральной части профиля интенсивности излучения)

(3), кривая 1, а также зависимость плотности энергии, переходящей в тепло (кривая 2). Сравнение кривых 1 и 3 показывает, что значения релаксационных времен, использованных в расчетах, выбраны правильно. Значительное расхождение кривых 2 и 3 подчеркивает некорректность прямого определения характерных времен из экспериментальных зависимостей $\rho'(t)$, получаемых с помощью интерферометра.

Все приведенные выше результаты получены для пучков с гауссовым профилем. Сложные профили возбуждающего излучения ведут к существенным искажениям вида зависимости для плотности по сравнению с зависимостью для термализуемой энергии.

На рис. 4 приведены кривые $\rho'(t)$ (1 — рассчитанная из уравнений (9)—(11), (3), 2 — экспериментальная) для кинетического охлаждения той же смеси $\text{CO}_2\text{—N}_2$ газов при действии светового пучка с провалом в центральной части профиля интенсивности. Некоторое расхождение этих зависимостей связано с упрощениями, использованными при расчете. Профиль пучка задавался в виде: $I(r') \sim (r')^2 e^{-(r')^2}$,

тогда как в эксперименте интенсивность в центральной части формируемого светового пучка была отлична от нуля. В результате этого расчетная глубина изменения плотности на первом этапе больше, чем измеренная. Сопоставление рис. 3 и 4 показывает, что сложный профиль пучка затрудняет извлечение значений характерных времен, так как зависимость плотности определяется не только кинетическими процессами, но и характерными размерами и формой профиля пучка. Поэтому при экспериментальном определении релаксационных времен необходимо использовать возбуждающие пучки простой формы.

Таким образом, проведенное исследование показало, что для правильного определения времен колебательной релаксации из экспериментальных зависимостей плотности необходимо учитывать волновой характер перераспределения вещества из-за неоднородного его нагрева при термализации колебательной энергии.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Никитин Е. Е., Осипов А. И. Колебательная релаксация в газах. М., 1977, 172 с.
2. Ступоченко Е. В., Лосев С. А., Осипов А. И. Релаксационные процессы в ударных волнах. М., 1965, 484 с.
3. Aoki T., Katayama M. Impulsive optic-acoustic effect of CO₂, SF₆ and NH₃ molecules.—Japan J. Appl. Phys., 1971, 10, 1303—1310.
4. Longaker P. R., Litvak M. M. Perturbation of the refractive index of absorbing media by a pulsed laser beam.—J. Appl. Phys., 1969, 40, 4303—4340.
5. Ахманов С. А., Гордиенко В. М., Михеенко А. В., Панченко В. Я. Зависимость скорости колебательно-поступательной релаксации в SF₆ от интенсивности селективного лазерного излучения.—Письма в ЖЭТФ, 1977, 26, 603—608.
6. Steinfeld J. I., Burak I., Sutton D. G., Nawak A. V. Infrared double resonance in sulfur hexfluoride.—J. Chem. Phys., 1970, 52, 5421—5428.
7. Гордиенко В. М., Горшков В. А., Панченко В. Я., Сухоруков А. П. Кинетическое охлаждение смеси газов CO₂—N₂ излучением CO₂-лазера.—ЖЭТФ, 1977, 73, 874—883.

Поступила в редакцию
07.07.78

ВЕСТН. МОСК. УН-ТА. СЕР. 3. ФИЗИКА. АСТРОНОМИЯ, 1980, Т. 21, № 4

УДК 534.222

В. Г. МОЖАЕВ, И. Ю. СОЛОДОВ

О ГЕНЕРАЦИИ ВТОРОЙ ГАРМОНИКИ АКУСТИЧЕСКИХ ВОЛН В ПЬЕЗОПОЛУПРОВОДНИКАХ

Относительно сильная акустоэлектронная нелинейность пьезополупроводников, обусловленная концентрационным механизмом образования тока в кристалле ($J \sim \rho E$, $\rho = \rho(E)$, ρ — плотность свободных зарядов, E — напряженность электрического поля), приводит к эффективной генерации второй гармоники акустической волны, нелинейному взаимодействию акустических волн между собой и другим нелинейным эффектам. На этой основе создан новый класс технических устройств — нелинейные акустические устройства обработки сигнальной информации [1].

Процесс образования второй гармоники при распространении акустической волны в пьезополупроводниках, являющийся типичным проявлением акустоэлектронной нелинейности, рассматривался в ряде