

Генерация излучения на чисто вращательных переходах в импульсном химическом $\text{H}_2 - \text{F}_2$ -лазере

Н.Е.Молевич, С.Ю.Пичугин

Теоретически исследована возможность получения эффективной генерации на чисто вращательных переходах молекул HF в импульсном химическом фторводородном лазере. Проведено моделирование работы $\text{H}_2 - \text{F}_2$ -лазера с давлением смеси 1.1 атм, генерирующего на переходах $v, j \rightarrow v, j - 1$ ($v = 1 - 6, j = 10 - 14$), с учетом резонансных VR-процессов. Расчетный суммарный по всем колебательным уровням удельный энергосъем лазерного излучения на чисто вращательных переходах с длиной волны $\lambda \sim 17$ мкм ($j = 14$) составляет 5.5 Дж/л, с $\lambda \sim 18.5$ мкм ($j = 13$) – 3.5 Дж/л и с $\lambda \sim 20$ мкм ($j = 12$) – 2.5 Дж/л.

Ключевые слова: химический $\text{H}_2 - \text{F}_2$ -лазер, колебательно-вращательные релаксационные процессы, чисто вращательные переходы.

Лазеры, работающие в видимом и ИК диапазонах, достаточно хорошо изучены и активно используются для прикладных целей. Разработка лазеров более длинноволнового диапазона ($\lambda \geq 15$ мкм) идет значительно медленнее, хотя сфера их применения достаточно широка и включает в себя различные биохимические, спектроскопические, плазменно-диагностические и некоторые другие приложения (разделение изотопов, зондирование атмосферы, исследование полупроводниковых материалов). В [1–4] была предложена новая схема возбуждения лазеров дальнего ИК диапазона, работающих на вращательных переходах галогеноводородов, с использованием предварительного возбуждения их колебательных состояний. Подобная схема возбуждения учитывает, что колебательная релаксация ряда двухатомных водородо-содержащих молекул протекает по колебательно-вращательному (VRT) механизму [5–9]. Его особенностью является резонансная передача энергии, запасенной в молекулярных колебаниях, на возбуждение высоколежащих вращательных состояний той же молекулы. Предполагается, что такой механизм релаксации свойствен молекулам галогеноводородов. В молекуле HF, например, этим вращательным состояниям соответствуют уровни с квантовыми числами $j \geq 14$. При определенных условиях такое возбуждение, осуществляемое «сверху», с учетом более медленной тепловой релаксации верхних вращательных уровней по сравнению с нижними, может привести к инверсной населенности вращательных состояний. Равновесное заселение вращательных состояний ограничено энергиями $\sim k_B T$, где T – температура газа. Поскольку при комнатных температурах вращательные квантовые числа уровней, соответствующие этим энергиям, $j_{\text{eq}} \ll 14$, возможно создание инверсии на каскаде вращательных состояний с $j_{\text{eq}} \leq j \leq 14$.

В [1, 2] рассматривалось термическое возбуждение колебательных уровней молекул HF с последующим охлаждением газа при быстрым расширении его в вакуум. При этом, в соответствии с расчетом, на вращательных уровнях HF инверсная населенность составляла $\sim 10^{14}$ см $^{-3}$. В [4] такая же инверсная населенность получена при расчете электроионизационного разряда в смеси, содержащей молекулы HF. В [10] осуществлено численное моделирование химического $\text{H}_2 - \text{F}_2$ -лазера с составом смеси $\text{F} : \text{F}_2 : \text{H}_2 : \text{He} = 0.02 : 0.99 : 1 : 20$ ($T = 300$ К, $p = 2700$ Па). Расчет показал, что при доминировании VRT-релаксации над VT-релаксацией возможно осуществление лазерной генерации на вращательных переходах в химическом $\text{H}_2 - \text{F}_2$ -лазере с удельной энергией ~ 0.1 Дж/л. Такая генерация была зафиксирована в экспериментах, описанных в [11–20] и многих других работах. Например, в [11] исследовался химический лазер атмосферного давления на смеси $\text{F}_2 : \text{H}_2 : \text{He} = 0.1 : 0.1 : 0.9$. Было определено, что около 10 % энергии выходного излучения приходилось на длинноволновую область ($\lambda > 15$ мкм), соответствующую чисто вращательным переходам. В [14–17] при исследовании различных смесей была получена генерация на вращательных переходах различных водородо-содержащих молекул (OH, OD, NH и HF), для которых теоретически установлена доминирующая роль VRT-механизма релаксации. О генерации излучения на переходах с высокими вращательными уровнями молекул галогеноводородов HF, HCl, HBr при электроразрядном иницировании сообщалось в [12, 13]. В подавляющем большинстве экспериментов единственным объяснением сильного вращательного возбуждения является прямое возбуждение вращательных состояний в процессе VRT-релаксации.

Цель настоящей работы – теоретическое исследование возможности получения эффективной генерации в импульсном химическом фторводородном лазере на чисто вращательных переходах. Ранее в [21] была разработана многоуровневая модель импульсного химического $\text{H}_2 - \text{F}_2$ -лазера, позволяющая исследовать генерацию (усиление) излучения на каждом отдельном колебательно-

Н.Е.Молевич, С.Ю.Пичугин. Самарский филиал Физического института им. П.Н.Лебедева РАН, Россия, 443011 Самара, ул. Ново-Садовая, 221; e-mail: molevich@fian.smr.ru

вращательном переходе $v, j - 1 \rightarrow v - 1, j$ с учетом неравновесной населенности вращательных подуровней молекул HF. Использование этой модели позволило рассчитать спектрально-временные и энергетические характеристики излучения $\text{H}_2\text{-F}_2$ -лазера на колебательно-вращательных переходах, достаточно хорошо согласующиеся с экспериментальными данными, полученными во ФГУП «Прикладная химия» [21]. В настоящей работе упомянутая модель используется в модернизированном виде с учетом VRT-механизма релаксации молекул HF.

Рассмотрим импульсный химический $\text{H}_2\text{-F}_2$ -лазер, генерирующий на чисто вращательных переходах $v, j \rightarrow v, j - 1$ ($v = 1 - 6$). Запишем уравнения для населенностей вращательных подуровней молекул HF, аналогичные уравнениям для среды фторводородного лазера, генерирующего на колебательно-вращательных переходах [21]:

$$\frac{dn_v^{(j)}}{dt} = -\frac{\alpha_{v,j}I_{v,j}}{h\nu_{v,j}} + \frac{\alpha_{v,j+1}I_{v,j+1}}{h\nu_{v,j+1}} + \frac{n_v - n_v^{(j)}}{M_{v,j}\tau_{v,j}} - \frac{n_v^{(j)}}{\tau_{v,j}} + R_{v,j} + S_{v,j}. \quad (1)$$

Здесь $n_v^{(j)}$ – концентрация молекул HF на колебательно-вращательном уровне v, j ; n_v – суммарная населенность v -го колебательного уровня HF; $\alpha_{v,j} = \sigma_{v,j}[n_v^{(j)} - n_v^{(j-1)}] \times (2j+1)/(2j-1)$; $\sigma_{v,j}$ – сечение индуцированного излучения на переходе $v, j \rightarrow v, j - 1$; $I_{v,j}$ – интенсивность внутрирезонаторного лазерного излучения на данном переходе; $\nu_{v,j}$ – соответствующая частота излучения; $\tau_{v,j}$ – характерное время вращательной релаксации в модели вращательного резервуара [22]; $M_{v,j} = (2j+1)^{-1}(T/Q_v) \times \exp[j(j+1)Q_v/T] - 1$; Q_v – характеристическая вращательная температура молекулы HF для v -го колебательного уровня; $R_{v,j}$ – член, описывающий резонансный VRT-процесс: $\text{HF}(v+1, j') + \text{M} \rightarrow \text{HF}(v, j) + \text{M}$; $S_{v,j}$ – вероятность распада уровня v, j в единицу времени за счет суперлюминесценции. Полагалось, что $S_{v,j} = A_{v,v-1} \times g_s(L\alpha_{v,v-1})$, где $A_{v,v-1}$ – коэффициент Эйнштейна для спонтанного излучения на колебательно-вращательном переходе $v, j \rightarrow v - 1, j + 1$; $\alpha_{v,v-1}$ – коэффициент усиления излучения на данном переходе; L – длина активной лазерной среды; выражение для функции $g_s(x)$ бралось из работы [23]. Время вращательной релаксации $\tau_{v,j}$ связано с константами скоростей $k_v^M(j \rightarrow j')$ RT-процессов $\text{HF}(v, j) + \text{M} \rightarrow \text{HF}(v, j') + \text{M}$ следующим соотношением:

$$\frac{1}{\tau_{v,j}} = \sum_{j', \text{M}} k_v^M(j \rightarrow j') N_{\text{M}}, \quad (2)$$

где N_{M} – концентрация компонента M лазерной смеси. Изменение интенсивностей $I_{v,j}$ описывается скоростными уравнениями

$$\frac{dI_{v,j}}{dt} = c(\alpha_{v,j} - g)I_{v,j} + V_{v,j}. \quad (3)$$

Здесь g – пороговый коэффициент усиления для излучения на чисто вращательных переходах HF; $V_{v,j}$ – член, учитывающий спонтанное излучение. При этом в расчетах предполагалось, что интенсивности излучения на колебательно-вращательных переходах HF значительно меньше величин $I_{v,j}$. Это осуществимо при использова-

нии селективного резонатора и длине активной среды, не превышающей некоторого порогового значения (20–50 см) [24]. Уравнения (3) необходимо решать совместно с уравнениями (1), а также уравнениями для населенностей n_v колебательных уровней молекулы HF ($v = 0 - 7$), уравнениями химической кинетики, уравнениями для среднего запаса колебательных квантов H_2 и температуры газовой среды. Учитываемые в расчетах химические процессы, протекающие в смеси $\text{H}_2\text{-F}_2\text{-O}_2\text{-He}$, используемые соответствующие константы скоростей и другие расчетные параметры приведены в работе [25].

Конкретные расчеты были выполнены для смеси $\text{H}_2:\text{F}_2:\text{O}_2:\text{He} = 1:3:0.3:7$ ($p = 1.1$ атм) при уровне иницирования, задаваемом начальной концентрацией свободных атомов фтора $N_{\text{a}} = 3 \times 10^{16} \text{ см}^{-3}$. Для констант скоростей RT-процессов $k_v^M(j \rightarrow j')$ брались выражения с экспоненциальной зависимостью $k_v^M(j \rightarrow j')$ от изменения вращательной энергии, использованные в работе [21], с теми же численными значениями коэффициентов.

В расчетах для простоты учитывались только следующие одноквантовые ($\Delta v = 1$) резонансные VR-процессы: $\text{HF}(v, 3) + \text{M} \rightarrow \text{HF}(v - 1, 14) + \text{M}$, где $v = 2 - 7$ и $\text{M} = \text{HF}, \text{H}_2$. Константы скоростей данных процессов полагались равными соответствующим константам скоростей колебательно-поступательной релаксации молекул HF при столкновениях с молекулами HF и H_2 [25]. Генерация излучения на чисто вращательных переходах HF в этом случае возможна на каскаде переходов $v, 14 \rightarrow v, 13; v, 13 \rightarrow v, 12; v, 12 \rightarrow v, 11$ ($v = 1 - 6$) и т. д. с длинами волн соответственно $\sim 17, \sim 18.5, \sim 20$ мкм и т. д. Из-за отсутствия экспериментальных данных по сечениям индуцированного излучения на переходах $v, j \rightarrow v, j - 1$ молекул HF для $v = 1 - 6$ и $j = 10 - 14$ в расчетах их значения варьировались от 10^{-15} до 10^{-14} см^2 . Заметим, что расчетные значения лазерного энергоусья на вышеуказанных чисто вращательных переходах, полученные при $\sigma_{v,j} = 10^{-15} \text{ см}^2$ ($g = 10^{-3} \text{ см}^{-1}$) и 10^{-14} см^2 ($g = 10^{-2} \text{ см}^{-1}$), были практически одинаковы.

В табл.1 представлены результаты расчетов удельной энергии излучения химического $\text{H}_2\text{-F}_2$ -лазера, генерирующего на чисто вращательных переходах $v, j \rightarrow v, j - 1$ ($v = 1 - 6, j = 14 - 10$) при $\sigma_{v,j} = 10^{-14} \text{ см}^2$ и $g = 10^{-2} \text{ см}^{-1}$. Видно, что удельный энергоусья лазерного излучения на переходах $v, j \rightarrow v, j - 1$ для $v = 2 - 4$ и $j = 14$ может составлять более 1 Дж/л, а суммарный по всем колебательным уровням энергоусья излучения $\text{H}_2\text{-F}_2$ -лазера на чисто вращательных переходах с длиной волны ~ 17 мкм достигает 5.5 Дж/л. Расчетные временные зависимости интенсивностей лазерного излучения, генерируемого на вращательных переходах молекул HF ($v = 3$), приведены на рис.1.

Таким образом, проведено моделирование работы импульсного химического фторводородного лазера, гене-

Табл.1. Удельный лазерный энергоусья ϵ_j , рассчитанный для перехода $v, j \rightarrow v, j - 1$.

| v | ϵ_{14} (Дж/л) | ϵ_{13} (Дж/л) | ϵ_{12} (Дж/л) | ϵ_{11} (Дж/л) | ϵ_{10} (Дж/л) |
|-----|------------------------|------------------------|------------------------|------------------------|------------------------|
| 1 | 0.7 | 0.4 | 0.3 | 0.15 | 0.05 |
| 2 | 1.4 | 0.9 | 0.5 | 0.3 | 0.1 |
| 3 | 1.3 | 0.9 | 0.6 | 0.3 | 0.15 |
| 4 | 1.1 | 0.7 | 0.5 | 0.3 | 0.15 |
| 5 | 0.7 | 0.5 | 0.4 | 0.25 | 0.15 |
| 6 | 0.3 | 0.2 | 0.15 | 0.1 | 0.06 |

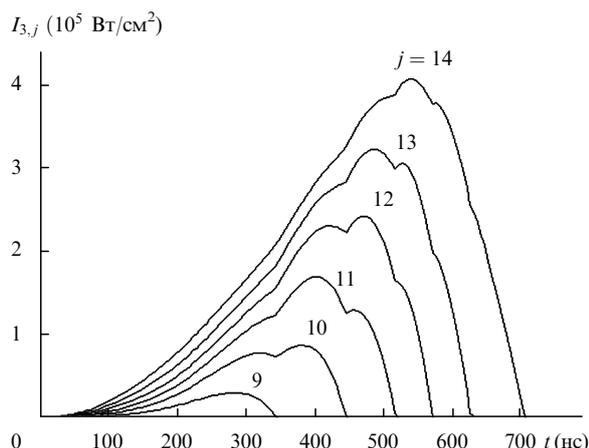


Рис.1. Расчетные временные зависимости интенсивностей внутривибрационного излучения, генерируемого на чисто вращательных переходах $v = 3, j \rightarrow v = 3, j - 1$ молекул HF. Пороговый коэффициент усиления $g = 10^{-2} \text{ см}^{-1}$.

рирующего на чисто вращательных переходах HF. Расчеты, проведенные для смеси $\text{H}_2 - \text{F}_2$ -лазера с общим давлением 1 атм при уровне иницирования $3 \times 10^{16} \text{ см}^{-3}$, показывают возможность эффективной генерации излучения на переходах $v, j \rightarrow v, j - 1$ для $v = 1 - 6$ и $j = 10 - 14$. Расчетный суммарный по всем колебательным уровням удельный энергосъем лазерного излучения на чисто вращательных переходах с $\lambda \sim 17 \text{ мкм}$ ($j = 14$) достигает 5.5 Дж/л, с $\lambda \sim 18.5 \text{ мкм}$ ($j = 13$) – 3.5 Дж/л и с $\lambda \sim 20 \text{ мкм}$ ($j = 12$) – 2,5 Дж/л.

В заключение отметим, что существует гипотеза о важной роли многоквантовых VR-переходов [6–9], в результате которых возбуждаются более высокие вращательные уровни (например, для молекулы HF при $\Delta v = 5$ для резонансных переходов возбуждаются вращательные уровни с $\Delta j \sim 30$). В этом случае спектральный диа-

пазон излучения на чисто вращательных переходах может быть значительно расширен в коротковолновую область.

1. Игошин В.И., Молевич Н.Е., Ораевский А.Н. *Квантовая электроника*, **10**, 748 (1983).
2. Igoshin V.I., Molevich N.E., Oraevskiy A.N. *Int. J. Infrared and Millimeter Waves*, **5**, 403 (1984).
3. Молевич Н.Е., Ораевский А.Н. *Квантовая электроника*, **11**, 1515 (1984).
4. Коган Е.Я., Молевич Н.Е., Ораевский А.Н., Сорока А.Н., Щеглов В.А. *Химическая физика*, **6**, 41(1987).
5. Молевич Н.Е., Ораевский А.Н. *Химия высоких энергий*, **21**, 3 (1987).
6. Wilkins R.L. *J. Chem. Phys.*, **67**, 5838 (1977).
7. Wilkins R.L. *J. Chem. Phys.*, **70**, 2700 (1979).
8. Wilkins R.L., Kwok M.A. *J. Chem. Phys.*, **73**, 3198 (1980).
9. Wilkins R.L., Kwok M.A. *J. Chem. Phys.*, **70**, 1705 (1979).
10. Kerber R.L., Brown R.C., Emery K.A. *Appl. Opt.*, **19**, 293 (1980).
11. Chen H.L. et al. *J. Chem. Phys.*, **61**, 306 (1974).
12. Deutsch F. *Appl. Phys. Lett.*, **11**, 18 (1967).
13. Akkit D.P., Yardley J.T. *IEEE J. Quantum Electron.*, **6**, 113 (1970).
14. Downey G.D. et al. *J. Chem. Phys.*, **66**, 1685 (1977).
15. Smith J.H., Robinson D.W. *J. Chem. Phys.*, **68**, 5474 (1978).
16. Smith J.H., Robinson D.W. *J. Chem. Phys.*, **71**, 271 (1979).
17. Smith J.H., Robinson D.W. *J. Chem. Phys.*, **74**, 5111 (1981).
18. Krogh O.D., Pimentel G.C. *J. Chem. Phys.*, **67**, 2993 (1977).
19. Cuellar E., Pimentel G.C. *J. Chem. Phys.*, **71**, 1385 (1979).
20. Rice W.W., Oldenberg R.C. *IEEE J. Quantum Electron.*, **13**, 86 (1977).
21. Азаров М.А., Игошин В.И., Пичугин С.Ю., Трошиненко Г.А. *Квантовая электроника*, **29**, 21 (1999).
22. Башкин А.С., Курдогьян М.С., Ораевский А.Н. *Труды ФИАН*, **194**, 45 (1989).
23. Басов Н.Г., Башкин А.С., Игошин В.И., Никитин В.Ю., Ораевский А.Н. *Препринт ФИАН № 44* (М., 1976).
24. Игошин В.И., Пичугин С.Ю. *Квантовая электроника*, **24**, 477 (1997).
25. Игошин В.И., Пичугин С.Ю. *Квантовая электроника*, **21**, 417 (1994).