

Импульсный $H_2 - F_2$ -лазер с одновременной генерацией излучения на вращательных и колебательно-вращательных переходах

Н.Е.Молевич, С.Ю.Пичугин

Теоретически исследована возможность работы импульсного химического $H_2 - F_2$ -лазера на чисто вращательных переходах при одновременной генерации излучения на колебательно-вращательных переходах. Проведено моделирование работы фторводородного лазера с давлением смеси 1.1 атм, генерирующего как на переходах $v, j - 1 \rightarrow v - 1, j$ ($j = 2 - 20$), так и на переходах $v, j \rightarrow v, j - 1$ ($j = 12 - 19$), с учетом резонансных одно- и двухквантовых VR-процессов. Расчетный удельный энергосъем лазерного излучения на чисто вращательных переходах достигает 0.3–0.5 Дж/л для $j = 18 - 19$ (длина волны 15.5–14 мкм) и 0.4–0.7 Дж/л для $j = 13 - 14$ (длина волны 21–19 мкм).

Ключевые слова: импульсный химический $H_2 - F_2$ -лазер, колебательно-вращательные процессы, чисто вращательные переходы.

Существующий в настоящее время несомненный интерес к исследованию и разработке лазеров, генерирующих в ИК диапазоне с длиной волны более 10 мкм, обусловлен возможностью их применения для разделения изотопов, зондирования атмосферы, исследования полупроводниковых материалов и т. д. В [1–4] был предложен новый механизм накачки лазеров дальнего ИК диапазона на вращательных переходах галогеноводородов путем предварительного возбуждения их колебательных состояний. В подобной схеме накачки учитывается, что колебательная релаксация ряда двухатомных водородсодержащих молекул, в том числе галогеноводородов, протекает по колебательно-вращательному (VRT) механизму [5–9]. Его особенностью является возбуждение высоколежащих вращательных состояний данных молекул путем резонансной передачи энергии от колебательных состояний той же молекулы. В молекуле HF, например, этим вращательным состояниям соответствуют уровни с квантовыми числами $j \geq 14$. При определенных условиях такое возбуждение с учетом более медленной тепловой релаксации верхних вращательных уровней по сравнению с нижними может привести к инверсной населенности вращательных состояний. В [1, 2] рассматривалось возбуждение колебательных уровней молекул HF тепловым способом с последующим охлаждением при быстром расширении в вакуум. В [10] осуществлено численное моделирование химического HF-лазера с составом смеси $F:F_2:H_2:He = 0.02:0.99:1:20$ ($T = 300$ К, $p = 2700$ Па). Расчет показал, что при доминировании VRT-релаксации над VT-релаксацией возможно осуществление лазерной генерации на вращательных переходах в химическом $H_2 - F_2$ -лазере с удельной энергией ~ 0.1 Дж/л. Такая генерация была зафиксирована в экс-

периментах, описанных в [11–20] и во многих других работах. Например, в [11] исследовался химический лазер атмосферного давления с соотношением основных компонентов смеси $F_2:H_2:He = 1:1:9$. Было определено, что около 10% энергии выходного излучения приходится на длинноволновую область ($\lambda > 15$ мкм), соответствующую чисто вращательным переходам. В [14–17] при исследовании различных смесей была получена генерация на вращательных переходах различных водородсодержащих молекул (OH, OD, NH и HF), для которых теоретически определено, что VRT-релаксация является доминирующей. В подавляющем большинстве экспериментов сильное вращательное возбуждение объяснялось прямым возбуждением вращательных состояний в процессе VRT-релаксации.

Цель настоящей работы – теоретическое исследование возможности получения эффективной генерации на чисто вращательных переходах HF в импульсном химическом $H_2 - F_2$ -лазере. Ранее в [21] была разработана многоуровневая модель импульсного фторводородного лазера, позволяющая исследовать генерацию (усиление) излучения на каждом отдельном колебательно-вращательном переходе $v, j - 1 \rightarrow v - 1, j$ с учетом неравновесной населенности вращательных подуровней молекул HF. Применение этой модели позволило рассчитать спектрально-временные и энергетические характеристики излучения $H_2 - F_2$ -лазера на колебательно-вращательных переходах, достаточно хорошо согласующиеся с экспериментальными данными [21]. В [22] упомянутая модель использовалась нами в модернизированном виде с учетом VRT-релаксации молекул HF. В этой работе было проведено теоретическое моделирование работы импульсного химического $H_2 - F_2$ -лазера, генерирующего на чисто вращательных переходах, с учетом одноквантовых резонансных VR-переходов. При этом для простоты предполагалось, что одновременная генерация лазерного излучения на колебательно-вращательных переходах отсутствует. Расчеты, проведенные для смеси $H_2 - F_2$ -лазера с общим давлением 1 атм, показали возможность эффективной генерации излучения на переходах $v, j \rightarrow$

Н.Е.Молевич, С.Ю.Пичугин. Самарский филиал Физического института им.П.Н.Лебедева РАН, Россия, 443056 Самара, ул. Ново-Садовая, 221; e-mail: molevich@fian.smr.ru, theor@fian.smr.ru

Поступила в редакцию 2 апреля 2010 г., после доработки – 4 февраля 2011 г.

$v, j - 1$ для $v = 1 - 4$ и $j = 14 - 12$. Расчетный удельный энергосъем лазерного излучения на чисто вращательных переходах с длинами волн более 19 мкм составил, например, для $v = 2$ и $j = 14, 13$ и 12 соответственно 1.4, 0.9 и 0.5 Дж/л. Существует гипотеза о важной роли многоквантовых VR-переходов, при которых возбуждаются более высокие вращательные уровни [6]. В двухквантовых VR-процессах, например, возможно возбуждение вращательных уровней молекул HF с $j \leq 19$, а следовательно, становится возможной генерация излучения, начиная с этих уровней (длина волны 14 мкм и более). В настоящей работе проводится моделирование работы импульсного химического $\text{H}_2 - \text{F}_2$ -лазера с учетом одно- и двухквантовых резонансных VR-процессов. При этом рассматривается случай одновременной генерации излучения на чисто вращательных и колебательно-вращательных переходах молекул HF, что соответствует реальным условиям экспериментов.

Рассмотрим $\text{H}_2 - \text{F}_2$ -лазер, генерирующий одновременно на колебательно-вращательных переходах $v, j - 1 \rightarrow v - 1, j$ и чисто вращательных переходах $v, j \rightarrow v, j - 1$. Запишем уравнения для населенностей вращательных подуровней молекул HF аналогично данным уравнениям в среде фторводородного лазера, работающего только на колебательно-вращательных переходах [21], дополнительно учитывая при этом одно- и двухквантовые резонансные VR-переходы ($\text{HF}(v + 1, j_1) + \text{M} \rightarrow \text{HF}(v, j) + \text{M}$ или $\text{HF}(v + 2, j_2) + \text{M} \rightarrow \text{HF}(v, j) + \text{M}$):

$$\begin{aligned} \frac{dn_v^j}{dt} = & -\frac{\alpha_{v,j} I_{v,j}}{h\nu_{v,j}} + \frac{\alpha_{v,j+1} I_{v,j+1}}{h\nu_{v,j+1}} - \frac{g_{v,j+1} Y_{v,j+1}}{hw_{v,j+1}} \\ & + \frac{g_{v+1,j} Y_{v+1,j}}{hw_{v+1,j}} + \frac{n_v - n_v^j}{M_{v,j} \tau_{v,j}} - \frac{n_v^j}{\tau_{v,j}} + R_{v,j}. \end{aligned} \quad (1)$$

Здесь n_v^j – концентрация молекул HF на v -м колебательном и j -м вращательном уровнях; n_v – суммарная населенность v -го колебательного уровня HF; $\alpha_{v,j} = \sigma_{v,j} [n_v^j - n_{v-1}^{j-1} (2j+1)/(2j-1)]$; $g_{v,j} = \sum_{v,j} [n_v^{j-1} - n_{v-1}^{j-1} (2j-1)/(2j+1)]$; $\sigma_{v,j}$ и $\sum_{v,j}$ – сечения индуцированного излучения на переходах $v, j \rightarrow v, j - 1$ и $v, j - 1 \rightarrow v - 1, j$; $I_{v,j}$ и $Y_{v,j}$ – интенсивности внутрирезонаторного лазерного излучения на данных переходах; $\nu_{v,j}$ и $w_{v,j}$ – соответствующие частоты излучения; $\tau_{v,j}$ – характерное время вращательной релаксации в модели вращательного резервуара [23]; $M_{v,j} = (2j+1)^{-1} (T/Q_v) \exp[j(j+1)Q_v/T] - 1$; Q_v – характеристическая вращательная температура молекулы HF для v -го колебательного уровня; $R_{v,j}$ – член, учитывающий резонансные VR-процессы (если на данный подуровень происходит соответствующий переход). Время вращательной релаксации $\tau_{v,j}$ связано с константами скоростей $k_v^M(j \rightarrow k)$ RT-процессов $\text{HF}(v, j) + \text{M} \rightarrow \text{HF}(v, k) + \text{M}$ следующим соотношением:

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

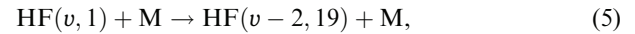
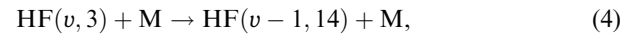
где N_{M} – концентрация компонента M лазерной смеси. Изменение интенсивностей $I_{v,j}$ и $Y_{v,j}$ описывается скоростными уравнениями

$$\frac{dI_{v,j}}{dt} = c(\alpha_{v,j} - g) I_{v,j} + V_{v,j}, \quad (2)$$

$$\frac{dY_{v,j}}{dt} = c(g_{v,j} - G) Y_{v,j} + W_{v,j}. \quad (3)$$

Здесь g и G – пороговые коэффициенты усиления для излучения на чисто вращательных и колебательно-вращательных переходах HF; $V_{v,j}$ и $W_{v,j}$ – члены, учитывающие спонтанное излучение. Уравнения (2) и (3) необходимо решать совместно с уравнениями (1), уравнениями для населенностей n_v колебательных уровней молекулы HF ($v = 0, 1, \dots, 7$), уравнениями химической кинетики, уравнениями для среднего запаса колебательных квантов H_2 и температуры газовой среды. Учитываемые в расчетах химические процессы в смеси $\text{H}_2 - \text{F}_2 - \text{O}_2 - \text{He}$, используемые соответствующие константы скоростей и другие расчетные параметры приведены в работе [24].

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 инициализации, задаваемом начальной концентрацией свободных атомов $N_a = 3 \times 10^{16} \text{ см}^{-3}$ [21]. Для констант скоростей RT-процессов $k_v^M(j \rightarrow k)$ брались выражения с экспоненциальной зависимостью $k_v^M(j \rightarrow k)$ от изменения вращательной энергии, использованные в работе [21], с теми же численными значениями коэффициентов. В расчетах для простоты учитывались только следующие одноквантовые и двухквантовые резонансные VR-процессы:



где M = HF, H_2 . Полагалось, что константа скорости процесса (4) в два раза превышает константу скорости (5), а их суммарные значения считались равными соответствующим значениям констант скоростей колебательно-поступательной релаксации молекул HF при столкновениях с молекулами HF и H_2 [24]. Генерация излучения на чисто вращательных переходах HF в этом случае возможна на каскаде переходов $v, 19 \rightarrow v, 18$; $v, 18 \rightarrow v, 17 \dots$ с длинами волн соответственно $\sim 14, \sim 15.5$ мкм и т.д. Из-за отсутствия экспериментальных данных по сечениям индуцированного излучения на переходах $v, j \rightarrow v, j - 1$ молекул HF для $j = 12 - 19$ в расчетах их значения варьировались от 10^{-15} до 10^{-14} см^2 . При этом расчетные значения лазерного энергосъема на вышеуказанных чисто вращательных переходах, полученные при $\sigma_{v,j} = 10^{-15}$ и 10^{-14} см^2 , были практически одинаковы.

В табл.1 приведены результаты расчетов удельной энергии излучения химического $\text{H}_2 - \text{F}_2$ -лазера, генерирующего на чисто вращательных переходах $v, j \rightarrow v, j - 1$ ($v = 0 - 3, j = 19 - 12$) при $\sigma_{v,j} = 10^{-15} \text{ см}^2$. Представлены также результаты аналогичных расчетов в отсутствие одновременной генерации лазерного излучения на колебательно-вращательных переходах (в расчетах использовалось большое значение G). Видно, что расчетный удельный энергосъем ϵ_j лазерного излучения на переходах $v, j \rightarrow v, j - 1$ для $v = 0 - 1$ и $j = 18 - 19$ ($\lambda \approx 14 - 15.5$ мкм) составляет 0.3–0.5 Дж/л, а для $v = 2 - 3$ и $j = 13 - 14$ ($\lambda \approx 19 - 21$ мкм) он равен 0.4–0.7 Дж/л. Причем отсутствие генерации на колебательно-вращательных переходах приводит к увеличению расчетных энергосъемов на чисто вращательных переходах на 20% – 40%. Как видно из табл.1, значения ϵ_j снижаются по мере генерации лазерного излучения на каскадах переходов $v, 19 \rightarrow v, 18$; $v, 18 \rightarrow v, 17 \dots$ и $v, 14 \rightarrow v, 13$; $v, 13 \rightarrow v, 12 \dots$, начиная с

Табл.1.

v	ε_{19} (Дж/л)	ε_{18} (Дж/л)	ε_{17} (Дж/л)	ε_{16} (Дж/л)	ε_{14} (Дж/л)	ε_{13} (Дж/л)	ε_{12} (Дж/л)
0	0.47 (0.47)	0.28 (0.3)	0.16 (0.17)	0.07 (0.07)	0.21 (0.17)	0.08 (0.06)	– –
1	0.48 (0.61)	0.32 (0.43)	0.17 (0.28)	0.08 (0.13)	0.5 (0.56)	0.23 (0.29)	0.06 (0.13)
2	0.34 (0.5)	0.23 (0.37)	0.13 (0.25)	0.04 (0.12)	0.7 (0.84)	0.37 (0.51)	0.17 (0.29)
3	0.25 (0.36)	0.17 (0.26)	0.11 (0.18)	0.05 (0.09)	0.6 (0.82)	0.34 (0.51)	0.17 (0.3)

Примечание: ε_j – удельный лазерный энергосъем, рассчитанный для перехода $v, j \rightarrow v, j - 1$; в скобках – результаты расчетов в отсутствие генерации на колебательно-вращательных переходах.

уровней с $j = 19$ и 14 , на которые происходит накачка энергии в результате резонансных VR-процессов (4), (5). Это является следствием потерь энергии за счет РТ-релаксации, вследствие чего не вся энергия излучения на переходе $v, j \rightarrow v, j - 1$ вновь излучается на переходе $v, j - 1 \rightarrow v, j - 2$ указанных каскадов. В связи с этим, например, оказываются весьма малыми значения ε_{16} . Суммарный удельный энергосъем на переходах $v, j \rightarrow v, j - 1$ ($v = 0 - 3, j = 12 - 19$) равнялся 6.8 Дж/л. При этом суммарный удельный энергосъем на колебательно-вращательных переходах $v, j - 1 \rightarrow v - 1, j$ ($v = 1 - 3, j = 2 - 20$) составил 65 Дж/л. На рис.1 представлены расчетные временные зависимости удельной мощности P_j лазерного излучения, генерируемого на переходах $1, j \rightarrow 1, j - 1$, для $j = 14, 19$. Видно, что генерация на этих переходах в случае отсутствия излучения на колебательно-вращательных переходах происходит немного (на 50 нс) раньше. Это объясняется более быстрым увеличением температуры лазерной смеси в данном случае из-за отсутствия потерь энергии на генерируемое излучение с длиной волны 2.5–3 мкм.

Таким образом, в настоящей работе проведено теоретическое моделирование работы импульсного химиче-

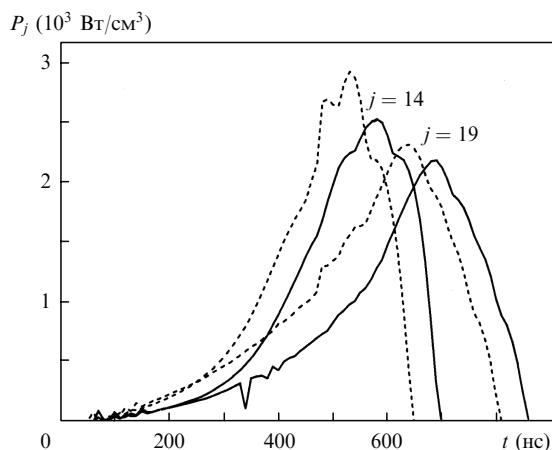


Рис.1. Временные зависимости удельной мощности излучения $\text{H}_2 - \text{F}_2$ -лазера, генерируемого на чисто вращательных переходах $1, 14 \rightarrow 1, 13$ и $1, 19 \rightarrow 1, 18$, при одновременной генерации на колебательно-вращательных переходах (сплошные кривые) и в случае отсутствия лазерного излучения на колебательно-вращательных переходах (штриховые кривые).

ского $\text{H}_2 - \text{F}_2$ -лазера, одновременно генерирующего на переходах $v, j - 1 \rightarrow v - 1, j$ ($j = 2 - 20$) и $v, j \rightarrow v, j - 1$ ($j = 12 - 19$), с учетом резонансных одно- и двухквантовых VR-процессов. Конкретные расчеты были выполнены для смеси $\text{H}_2:\text{F}_2:\text{O}_2:\text{He} = 1:3:0.3:7$ с общим давлением 1.1 атм при уровне иницирования, задаваемом начальной концентрацией свободных атомов $N_a = 3 \times 10^{16} \text{ см}^{-3}$. Расчетный удельный энергосъем лазерного излучения на чисто вращательных переходах с длинами волн $\lambda \approx 17 - 14$ мкм составил 0.3–0.5 Дж/л ($v = 0 - 1, j = 18 - 19$), а с $\lambda \approx 21 - 19$ мкм он был равен 0.4–0.7 Дж/л ($v = 2 - 3, j = 13 - 14$). При этом подавление генерации на колебательно-вращательных переходах приводило к увеличению энергосъемов на чисто вращательных переходах на 20%–40%.

- Игошин В.И., Молевич Н.Е., Ораевский А.Н. *Квантовая электроника*, **10**, 748 (1983).
- Igoshin V.I., Molevich N.E., Oraevskiy A.N. *Intern. J. Infrared Millimeter Waves*, **5**, 403 (1984).
- Молевич Н.Е., Ораевский А.Н. *Квантовая электроника*, **11**, 1515 (1984).
- Коган Е.Я., Молевич Н.Е., Ораевский А.Н., Сорока А.Н., Щеглов В.А. *Химическая физика*, **6**, 41(1987).
- Молевич Н.Е., Ораевский А.Н. *Химия высоких энергий*, **21**, 3 (1987).
- Wilkins R.L. *J. Chem. Phys.*, **67**, 5838 (1977).
- Wilkins R.L. *J. Chem. Phys.*, **70**, 2700 (1979).
- Wilkins R.L., Kwok M.A. *J. Chem. Phys.*, **73**, 3198 (1980).
- Wilkins R.L., Kwok M.A. *J. Chem. Phys.*, **70**, 1705 (1979).
- Kerber R.L., Brown R.C., Emery K.A. *Appl. Opt.*, **19**, 293 (1980).
- Chen H.L. et al. *J. Chem. Phys.*, **61**, 306 (1974).
- Deutsch F. *Appl. Phys. Lett.*, **11**, 18 (1967).
- Akkit D.P., Yardley J.T. *IEEE J. Quantum Electron.*, **6**, 113 (1970).
- Downey G.D. et al. *J. Chem. Phys.*, **66**, 1685 (1977).
- Smith J.H., Robinson D.W. *J. Chem. Phys.*, **68**, 5474 (1978).
- Smith J.H., Robinson D.W. *J. Chem. Phys.*, **71**, 271 (1979).
- Smith J.H., Robinson D.W. *J. Chem. Phys.*, **74**, 5111 (1981).
- Krogh O.D., Pimentel G.C. *J. Chem. Phys.*, **67**, 2993 (1977).
- Cuellar E., Pimentel G.C. *J. Chem. Phys.*, **71**, 1385 (1979).
- Rice W.W., Oldenberg R.C. *IEEE J. Quantum Electron.*, **13**, 86 (1977).
- Азаров М.А., Игошин В.И., Пичугин С.Ю., Трошчиненко Г.А. *Квантовая электроника*, **29**, 21 (1999).
- Молевич Н.Е., Пичугин С.Ю. *Квантовая электроника*, **38**, 330 (2008).
- Башкин А.С., Курдоглян М.С., Ораевский А.Н. *Труды ФИАН*, **194**, 45 (1989).
- Игошин В.И., Пичугин С.Ю. *Квантовая электроника*, **24**, 477 (1997).