

УДК 621.373

МОДЕЛИРОВАНИЕ ИМПУЛЬСНОГО ФТОРВОДОРОДНОГО ЛАЗЕРА, ГЕНЕРИРУЮЩЕГО НА ЧИСТО ВРАЩАТЕЛЬНЫХ ПЕРЕХОДАХ

© 2009 Н.Е. Молевич, С.Ю. Пичугин

Самарский филиал Физического института им. П.Н. Лебедева РАН

Поступила в редакцию 07.04.2009

Теоретически исследована возможность получения эффективной генерации на чисто вращательных переходах молекул HF в импульсном химическом $H_2 - F_2$ -лазере. Проведено моделирование работы фторводородного лазера с давлением смеси 1,1 атм, генерирующего на переходах $v_j \rightarrow v_{j-1}$ ($v = 0 - 5$, $j = 11 - 19$), с учетом резонансных одно и двухквантовых VR-процессов. Расчетный удельный энергосъем лазерного излучения на чисто вращательных переходах составил 0,5 - 0,6 Дж/л для $v = 0 - 2$, $j = 19, 18$ (длина волны 14 - 15,5 мкм) и 0,5 - 0,9 Дж/л для $v = 2 - 4$, $j = 14, 13$ (длина волны 19 - 22 мкм). Ключевые слова: химический $H_2 - F_2$ -лазер, колебательно-вращательные процессы, чисто вращательные переходы.

Лазеры, излучающие в ИК диапазоне с длиной волны более 10 мкм, могут применяться для разделения изотопов, зондирования атмосферы, исследования полупроводниковых материалов и т.д. Поэтому в настоящее время имеется несомненный интерес к исследованию и разработке подобного типа лазеров. В [1-4] был предложен новый механизм накачки лазеров дальнего ИК диапазона на вращательных переходах галогеноводородов путем предварительного возбуждения их колебательных состояний. Подобная схема накачки учитывает, что колебательная релаксация ряда двухатомных водородосодержащих молекул протекает по колебательно-вращательному (VRT) механизму [5-9]. Его особенностью является возбуждение высоко лежащих вращательных состояний данных молекул путем резонансной передачи энергии от колебательных состояний той же молекулы. Предполагается, что такой механизм релаксации свойственен молекулам галогеноводородов. В молекуле HF, например, этим вращательным состояниям соответствуют уровни с квантовыми номерами $j \geq 14$. При определенных условиях такое возбуждение с учетом более медленной тепловой релаксации верхних вращательных уровней по сравнению с нижними, может привести к инверсной заселенности вращательных состояний. Равновесное заселение вращательных состояний ограничено энергией $\sim kT$, где T – температура газа. Поскольку при комнатных температурах вращательные квантовые числа уровней, соответствующие этим энергиям $j_{eq} \ll 14$, возможно создание инверсии на каскаде вращательных состоя-

ний от $j \geq 14$ до j_{eq} (для молекулы HF $j_{eq} = 3$). 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 доминирующей роли VRT-релаксации над VT-релаксацией возможно осуществление лазерной генерации на вращательных переходах в химическом $H_2 - F_2$ -лазере с удельной энергией $\sim 0,1$ Дж/л. Такая генерация была зафиксирована в экспериментах, описанных в работах [11-20] и многих других. Например, в [11] исследовался химический лазер атмосферного давления на смеси $F_2:H_2:He = 0,1:0,1:0,9$.

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 водородосодержащих молекул: OH, OD, NH и HF, для которых теоретически найдена доминирующая роль VRT-механизма релаксации. В подавляющем большинстве экспериментов единственным объяснением сильного вращательного возбуждения является прямое возбуждение вращательных состояний в процессе VRT релаксации.

Целью настоящей работы является теоретическое исследование возможности получения эффективной генерации на чисто вращательных переходах HF в импульсном химическом фторводородном лазере. Ранее в [21] была разработана многоуровневая модель импульсного химического $H_2 - F_2$ -лазера, позволяющая исследовать генерацию (усиление) излучения на

Молевич Нонна Евгеньевна, доктор физико-математических наук, зав. теоретическим сектором.

E-mail: molevich@fian.smr.ru

Пичугин Сергей Юрьевич, кандидат физико-математических наук, старший научный сотрудник.

E-mail: theor@fian.smr.ru

каждом отдельном колебательно-вращательном переходе $v, j-1 \rightarrow v-1, j$ с учетом неравновесной заселенности 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, полученными в ФГУП "Прикладная химия" [21]. В работе [22] упомянутая модель нами использовалась в модернизированном виде с учетом VRT-механизма релаксации молекул HF. В [22] было проведено теоретическое моделирование работы импульсного химического $H_2 - F_2$ -лазера, генерирующей на чисто вращательных переходах $v, j \rightarrow v, j-1$ ($v = 1, 2, \dots, 6$, $j = 10 - 14$) с учетом одноквантовых резонансных VR-переходов. В расчетах для простоты учитывались только следующие VR-процессы: $HF(v, 3) + M > HF(v-1, 14) + M$, где $v = 2 - 7$ и $M = HF, H_2$. Значения констант скоростей данных процессов полагались равными соответствующим значениям констант скоростей колебательно-поступательной релаксации молекул HF при столкновениях с молекулами HF и H_2 . Расчеты, проведенные для смеси HF-лазера с общим давлением 1 атм показали возможность эффективной генерации излучения на переходах $v, j \rightarrow v, j-1$ для $v = 1 - 6$ и $j = 14 - 10$. Расчетный удельный энергосъем лазерного излучения на чисто вращательных переходах для $v = 2$ и $j = 14, 13, 12, 11$ и 10 с длинами волн более 19 мкм составил соответственно 1,4 Дж/л, 0,9 Дж/л, 0,5 Дж/л, 0,3 Дж/л и 0,1 Дж/л.

Существует гипотеза о важной роли многоквантовых VR переходов, при которых возбуждаются более высокие вращательные уровни. В этом случае спектральный диапазон излучения на чисто вращательных переходах может быть значительно расширен в коротковолновую область. В настоящей работе проводится моделирование импульсного химического $H_2 - F_2$ -лазера, генерирующего на чисто вращательных переходах, с учетом одно- и двухквантовых резонансных VR-процессов. В двухквантовых VR-процессах возможно возбуждение вращательных уровней молекул HF с номерами $j = 19 - 20$ и соответственно становится возможным исследовать генерацию излучения, начиная с этих уровней.

Рассмотрим импульсный химический $H_2 - F_2$ -лазер, генерирующий на чисто вращательных переходах $v, j \rightarrow v, j-1$ ($v = 0, 2, \dots, 5$). Запишем уравнения для населенностей вращательных подуровней молекул HF аналогично данным уравнениям в среде фтороводородного лазера, генерирующего на колебательно-вращательных пе-

реходах [21]. При этом дополнительно учтем одно- и двухквантовые резонансные VR-переходы: $HF(v+1, j_1) + M > HF(v, j) + M$ или $HF(v+2, j_2) + M > HF(v, j) + M$:

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

Здесь n_v^j - удельная концентрация молекул HF на v -м колебательном и j -м вращательном уровнях, n_v - суммарная населенность v -го колебательного уровня HF, $\alpha_{v,j} = \sigma_{v,j} [n_v^j - n_{v-1}^{j-1} (2j+1)/(2j-1)]$, где $\sigma_{v,j}$ - сечение индуцированного излучения на переходе $v, j \rightarrow v, j-1$, $I_{v,j}$ - интенсивность внутривибраторного лазерного излучения на данном переходе, $\nu_{v,j}$ - соответствующая частота излучения, $\tau_{v,j}$ - характерное время вращательной релаксации в модели вращательного резервуара [23], $M_{v,j} = (2j+1)^{-1} \exp[j(j+1)Q_v/T] / Q_v - 1$, Q_v - характеристическая вращательная температура молекулы HF для v -того 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 ($j > k$) RT-процессов $HF(v, j) + M > HF(v, k) + M$ следующим соотношением:

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

где N_M - концентрация компонента M лазерной смеси. Изменение интенсивностей $I_{v,j}$ описывается скоростными уравнениями генератора:

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

Здесь, g - пороговое усиление резонатора для излучения на чисто вращательных переходах HF, $V_{v,j}$ - член, учитывающий спонтанное излучение. Уравнения (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 $H_2 - F_2 - O_2 - He$, используемые соответствующие константы скоростей и другие расчетные параметры приведены в работе [24].

Конкретные расчеты были выполнены для смеси $H_2:F_2:O_2:He = 1:3:0,3:7$ ($p = 1,1$ атм) при уровне иницирования, задаваемом начальной

Таблица 1. Значения удельных лазерных энергоъемов ϵ_j , рассчитанных для переходов $v, j \rightarrow v, j-1$

v	$\epsilon_{19},$ Дж/л	$\epsilon_{18},$ Дж/л	$\epsilon_{17},$ Дж/л	$\epsilon_{16},$ Дж/л	$\epsilon_{15},$ Дж/л	$\epsilon_{14},$ Дж/л	$\epsilon_{13},$ Дж/л	$\epsilon_{12},$ Дж/л	$\epsilon_{11},$ Дж/л
0	0,5	0,37	0,24	0,14	0,05	0,17	0,09	0,04	0,01
1	0,6	0,46	0,33	0,19	0,03	0,6	0,33	0,17	0,06
2	0,5	0,4	0,3	0,18	0,03	0,9	0,55	0,3	0,14
3	0,37	0,3	0,24	0,16	0,05	0,88	0,58	0,36	0,17
4	0,24	0,2	0,17	0,12	0,05	0,72	0,5	0,32	0,16
5	0,09	0,08	0,06	0,04	0,01	0,46	0,33	0,22	0,12

концентрацией свободных атомов $N_a = 3 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-3}$. Для констант скоростей RT-процессов k_v^M ($j > k$) брались выражения с экспоненциальной зависимостью k_v^M ($j > k$) от изменения вращательной энергии, использованные в работе [21], с теми же численными значениями коэффициентов.

В расчетах для простоты учитывались только следующие одноквантовые ($\Delta v = 1$) и двухквантовые ($\Delta v = 2$) резонансные VR-процессы:

$$\text{HF}(v,3) + M > \text{HF}(v-1,14) + M, \quad (4)$$

$$\text{HF}(v,1) + M > \text{HF}(v-2,19) + M, \quad (5)$$

где $v = 2 - 7$ и $M = \text{HF}, \text{H}_2$. Полагалось, что константа скорости процесса (4) в два раза превосходит константу скорости (5), а их суммарные значения полагались 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 $v, 19 > v, 18; v, 18 > v, 17; v, 17 > v, 16 \dots$ ($v = 0 - 5$) с длиной волны соответственно около 14 мкм, 15 мкм, 16 мкм и т.д. Из-за отсут-

ствия экспериментальных данных по величинам сечений индуцированного излучения на переходах молекул HF $v, j \rightarrow v, j-1$ для $v = 0 - 5$ и $j = 11 - 19$ в расчетах их значения варьировались от 10^{-15} см^2 до 10^{-14} см^2 . Заметим, что расчетные значения лазерного энергоъема на выше указанных чисто вращательных переходах, полученные при $\sigma_{vj} = 10^{-15} \text{ см}^2$ ($g = 10^{-3} \text{ см}^{-1}$) и $\sigma_{vj} = 10^{-14} \text{ см}^2$ ($g = 10^{-2} \text{ см}^{-1}$), 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 $v, j \rightarrow v, j-1$ ($v = 0, 1, \dots, 5; j = 19 - 11$) при $\sigma_{vj} = 10^{-14} \text{ см}^2$ и $g = 10^{-2} \text{ см}^{-1}$. Видно, что расчетный удельный энергоъем лазерного излучения на переходах $v, j \rightarrow v, j-1$ составляет 0,5 - 0,6 Дж/л для $v = 1 - 2, j = 18 - 19$ ($\lambda / 14 - 15,5$ мкм) и 0,5 - 0,9 Дж/л для $v = 2 - 4, j = 13 - 14$ ($\lambda / 19 - 21$ мкм). На рис. 1 представлены расчетные временные зависимости интенсивностей внутрирезонаторного излучения, генерируемого на переходах $1, j \rightarrow 1, j-1$, для $j = 13, 14, 17, 18, 19$.

Таким образом, в настоящей работе проведено моделирование работы импульсного химического фторводородного лазера, генерирующего на чисто вращательных переходах HF, с учетом одно и двухквантовых резонансных VR-процессов.

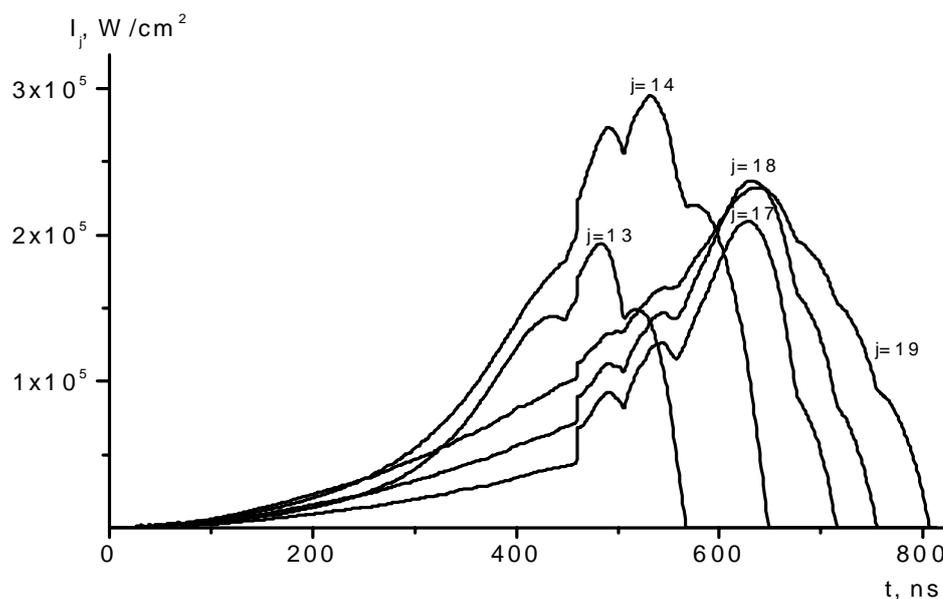


Рис. 1. Временные зависимости интенсивностей излучения $\text{H}_2 - \text{F}_2$ -лазера, генерируемых на чисто вращательных переходах $1, j > 1, j-1$

Расчеты, проведенные для смеси HF-лазера с общим давлением 1 атм при уровне инициирования $3 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-3}$ показывают возможность эффективной генерации излучения на переходах $v_j \rightarrow v_j-1$ для $v = 0 - 5$ и $j = 11 - 19$. При этом расчетный спектральный диапазон излучения на чисто вращательных переходах содержит линии в диапазоне $\lambda / 14 - 27 \text{ мкм}$.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Игошин В.И., Молевич Н.Е., Ораевский А.Н.* Кинетико-газодинамическая модель и расчет характеристик $\text{H}_2 - \text{HF}$ -ГДЛ на чисто вращательных переходах // Квантовая электроника. 1983. Т. 10, № 4. С. 748-755.
2. *Igoshin V.I., Molevich N.E., Oraevskiy A.N.* High power pure rotational laser due to vibrational excitation // International Journal of Infrared and Millimeter Waves. 1984. V. 5. № 3. P. 403-433.
3. *Молевич Н.Е., Ораевский А.Н.* Молекулярные длинноволновые лазеры и перспективы их развития // Квантовая электроника. 1984. Т. 11. № 8. С. 1515-1532.
4. *Козан Е.Я., Молевич Н.Е., Ораевский А.Н., Сорока А.Н., Щеглов В.А.* Особенности неравновесной функции распределения молекул галогеноводородов в электроионизационном разряде // Химическая физика. 1987. Т. 6. № 1. С. 41-44.
5. *Молевич Н.Е., Ораевский А.Н.* Колебательно-вращательная релаксация простейших водородосодержащих молекул // Химия высоких энергий. 1987. Т. 21, № 1. С. 3-16.
6. *Wilkins R.L.* Mechanism of energy transfer in hydrogen fluoride systems // J. Chem. Phys. 1977. V. 67. № 12. P. 5838-5854.
7. *Wilkins R.L.* Mechanism of energy transfer in the deuterium fluoride system // J. Chem. Phys. 1979. V. 70. № 6. P. 2700-2704.
8. *Wilkins R.L., Kwok M.A.* Temperature dependence of vibrational relaxation from the upper vibrational levels of HF and DF // J. Chem. Phys. 1980. V. 73. № 7. P. 3198-3204.
9. *Wilkins R.L., Kwok M.A.* Temperature dependence of HF($v_1=1$) + HF($v_2=0$) vibrational relaxation // J. Chem. Phys. 1979. V. 70. № 4. P. 1705-1710.
10. *Kerber R.L., Brown R.C., Emery K.A.* Rotational nonequilibrium mechanisms in pulsed $\text{H}_2 + \text{F}_2$ chain reaction lasers. 2: Effect of VR energy exchange // Applied Optics. 1980. V. 19. № 2.
11. *Chen H.L. et al.* Atmospheric pressure pulsed HF chemical laser // J. Chem. Phys. 1974. V. 61. № 1. P. 306-318.
12. *Deutsch F.* Laser emission from HF rotational transitions // Appl. Phys. Letters. 1967. V. 11. № 1. P. 18-20.
13. *Akkit D.P., Yardley J.T.* Far-infrared laser emission in gas discharges containing boron trihalides // IEEE J. Quant. Electron. 1970. V. QE-6. № 2. P. 113-116.
14. *Downey G.D. et al.* A pure-rotational collisionally pumped OH laser // J. Chem. Phys. 1977. V. 66. № 4. P. 1685-1688.
15. *Smith J.H., Robinson D.W.* The OH and OD laser: Collision-induced energy transfer pumping // J. Chem. Phys. 1978. V. 68. № 12. P. 5474-5480.
16. *Smith J.H., Robinson D.W.* Pure rotational lasing in four electronic states of NH: Impulsive to adiabatic collisional pumping // J. Chem. Phys. 1979. V. 71. № 1. P. 271-280.
17. *Smith J.H., Robinson D.W.* Chemical pumping of pure rotational HF lasers // J. Chem. Phys. 1981. V. 74. № 9. P. 5111-5115.
18. *Krogh O.D., Pimentel G.C.* $\text{ClF}_x - \text{H}_2$ chemical lasers ($x=1,3,5$): vibration-rotation emission by HF from states with high rotational excitation // J. Chem. Phys. 1977. V. 67. № 7. P. 2993-3001.
19. *Cuellar E., Pimentel G.C.* Rotational laser emission by HF in the $\text{ClF} - \text{H}_2$ chemical laser // J. Chem. Phys. 1979. V. 71. № 3. P. 1385-1391.
20. *Rice W.W., Oldenborg R.C.* Pure rotational HF laser oscillations from exploding-wire laser // IEEE J. Quant. Electron. 1977. V. QE-13. № 3. P. 86-88.
21. *Азаров М.А., Игошин В.И., Пичугин С.Ю., Троциненко Г.А.* Спектрально-энергетические характеристики импульсного фторводородного лазера и вращательная релаксация молекул HF // Квантовая электроника. 1999. Т. 29. № 1. С. 21-23.
22. *Молевич Н.Е., Пичугин С.Ю.* Генерация излучения на чисто вращательных переходах в импульсном химическом $\text{H}_2 - \text{F}_2$ -лазере // Квантовая электроника. 2008. Т.38. № 4. С. 330-332.
23. *Башкин А.С., Курдоглыан М.С., Ораевский А.Н.* Возбуждение молекул HF резонансным излучением и преобразователи излучения химических HF-лазеров // Труды ФИАН. 1989. Т. 194. С. 45-70.
24. *Игошин В.И., Пичугин С.Ю.* Многоуровневая модель импульсного химического $\text{H}_2 - \text{F}_2$ -лазера и перспективные режимы его работы // Квантовая электроника. 1994. Т. 21. № 5. С. 417-421.

SIMULATION OF A PULSED HYDROGEN FLUORIDE LASER EMITTING AT PURELY ROTATIONAL TRANSITIONS

© 2009 N.E. Molevich, S.Yu. Pichugin

Samara Branch of Physics Institute named after P.N. Lebedev of Russian Academy of Science

The possibility of obtaining efficient emission at purely rotational transitions of HF molecules in a pulsed chemical $\text{H}_2 - \text{F}_2$ laser is studied theoretically. The operation of a hydrogen fluoride laser with a gas pressure of 1.1 atm emitting at the $v_j \rightarrow v_j-1$ ($v = 0 - 5$, $j = 11 - 19$) transitions is simulated taking into account resonance VR processes. The calculated specific laser energy on purely rotational transitions is $0.5 - 0.6 \text{ JL}^{-1}$ at $v = 0 - 2$, $j = 19, 18$ (wave length is $14 - 15,5 \text{ мм}$) and $0.5 - 0.9 \text{ JL}^{-1}$ at $v = 2 - 4$, $j = 14, 13$ (wave length is $19 - 22 \text{ мм}$).

Key words: chemical $\text{H}_2 - \text{F}_2$ laser, vibrational-rotational processes, purely rotational transitions.

Nonna Molevich, Doctor Physics and Mathematics, Head of Theoretical Sector. E-mail: molevich@fian.smr.ru
Sergey Pichugin, Candidate of physical and mathematical sciences, Chief Research Fellow. E-mail: theor@fian.smr.ru