

УДК 621.378.335.

В. А. Вахненко, И. А. Измайлов, В. А. Кочелап

О РЕКОМБИНАЦИОННЫХ ГАЗОДИНАМИЧЕСКИХ ЛАЗЕРАХ НА ЭЛЕКТРОННЫХ ПЕРЕХОДАХ ДВУХАТОМНЫХ МОЛЕКУЛ

1. Рекомбинационные газодинамические лазеры (ГДЛ) на электронных переходах молекул обсуждаются в течение ряда лет [1—5]. В таких лазерах тепловая энергия затрачивается на диссоциацию молекул, а последующая рекомбинация атомов и радикалов в неравновесных условиях после быстрого охлаждения должна приводить к накачке электронно-возбужденных молекул — продуктов рекомбинации и возникновению частичной инверсии на электронно-колебательных фотопереходах. Интерес к рекомбинационным ГДЛ обусловлен возможностью преобразования тепловой энергии в когерентное перестраиваемое излучение в видимой и ближней ИК-областях спектра. В работах [1—5] теоретически исследовались принципиальные особенности таких ГДЛ, рассматривались конкретные реакции рекомбинации.

Наиболее подходящими для рекомбинационных ГДЛ оказались реакции атомов с образованием двухатомных молекул VI и VII групп.

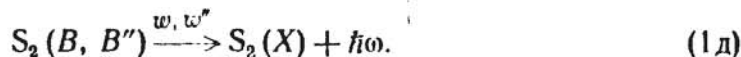
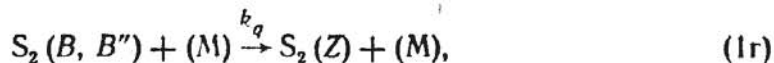
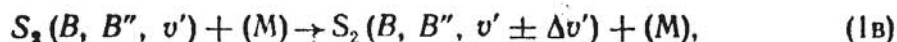
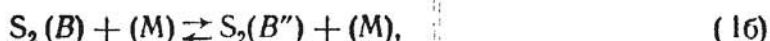
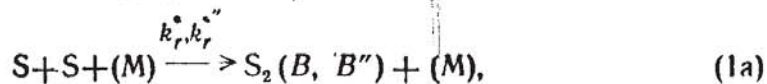
К настоящему времени на ряде молекул из этих групп (S_2 , Te_2 , Se_2 , JCl , J_2 и др.) получена непрерывная генерация [6—8]. В этих работах осуществлялась прямая оптическая накачка верхних электронных состояний. Если рассматривать лазерный процесс как совокупность трех последовательных стадий — накачки верхнего рабочего уровня, вынужденного фотоперехода и опустошения нижнего рабочего уровня, то в [6—8] были апробированы две последние стадии лазерного процесса, существенные и при рекомбинационной накачке. Сама рекомбинационная накачка в этих работах не была осуществлена.

Недавние эксперименты с Cl_2 [9] доказали, что в условиях быстрого охлаждения в сверхзвуковых потоках диссоциированного газа осуществляется интенсивная рекомбинационная накачка электронно-возбужденных состояний. Скорость этой накачки достаточна для достижения (при наличии инверсии) коэффициента усиления света порядка 10^{-3} см^{-1} в непрерывном режиме (в ближней ИК-области спектра для молекулы Cl_2).

В настоящей работе продолжено исследование рекомбинационного ГДЛ на двухатомных молекулах. Впервые приводятся результаты численного расчета параметров рекомбинирующих потоков для смесей $S_2:Ar$ и $Vg_2:Ar$; с учетом кинетики электронно-возбужденных состояний S_2 и Vg_2 найдены условия инверсии и коэффициенты усиления света для различных длин волны света λ . Обсуждается роль разбавителя в рассматриваемом типе ГДЛ.

2. Расчет рекомбинирующих потоков, истекающих через сверхзвуковое сопло, проводился в квазиодномерном приближении. Уравнения химической кинетики и газовой динамики приведены, например, в [1]. До- и трансзвуковая области потоков рассчитывались методом установления [10]. Ниже по потоку уравнения решались по методу [11]. В качестве разбавителя выбирался Ar . Термодинамические параметры газов брались из [12]. Расчет проводился для плоских сопел с клиновидной сверхзвуковой частью. Дозвуковая часть сопла задавалась скруглением радиусом R . Для определенности принималось $R/h=10$, где h — высота критического сечения, угол раскрытия сопла $\theta=30^\circ$.

3. Видимое излучение молекулы S_2 обусловлено фотопереходами из состояний $B^3\Sigma_u^-$ и $B''^3\Pi_u$. При рекомбинации электронная кинетика включает следующие этапы [13]:



Здесь уравнение (1a) описывает рекомбинационные процессы, приводящие к девяти состояниям B и B'' , (1б) — безызлучательный переход $B \rightarrow B''$; (1в) — колебательную релаксацию; (1г) — тушение с переходом в другие электронные состояния Z ; (1д) — фотопереходы.

Сечения процессов (1б) и (1в) порядка сечений газокинетических столкновений. Поэтому следует считать, что между состояниями B и B'' , а также между колебательными уровнями этих состояний успевают установиться равновесие. Воспользовавшись спектроскопическими параметрами состояний B и B'' из [14], находим связь между концентрацией $[S_2(B)]$ и полной концентрацией электронно-возбужденных молекул в состояниях B и B'' $[S_2^*]$:

$$[S_2(B)] = [S_2^*]/(1 + 3e^{-800/T}). \quad (2)$$

Для расчета $[S_2^*]$ приняты следующие значения констант скоростей процессов: константа рекомбинации $k_r^* + k_r^{**} = 8,3 \cdot 10^{-31} T^{-1} \text{ см}^6/\text{с}$ для $M = Ar, S_2$ (T — температура газа); константа тушения $k_q = 3,5 \times 10^{-13} \text{ см}^3/\text{с}$ для $M = Ar, S_2$ и $k_q = 10^{-11} \text{ см}^3/\text{с}$ для $M = S$; вероятности радиационного распада $\omega = 2,2 \cdot 10^7 \text{ с}^{-1}$, $\omega'' = 5 \cdot 10^6 \text{ с}^{-1}$ [13]. Константу полного процесса $S+S+(M) \rightarrow S_2+(M)$ для $M = Ar, S_2$, согласно [15], выбрали такой же, как для кислорода, близкое к этому значение выбрано в [5]. Для $M = S$ скорость всех рекомбинационных каналов считается в пять раз большей, чем для $M = Ar$. Отметим, что в рассмотренных ниже случаях существенно разбавленных газов процессы рекомбинации «замораживаются» в сверхзвуковой части сопла и изменение полной константы в несколько раз не сказывается на результатах.

Быстрая колебательная релаксация в основном электронном состоянии, отмеченная выше и обсуждавшаяся в работах [5, 13], позволяет считать распределение по колебательным уровням в этом состоянии равновесным с локальной температурой газа.

Каждый из рассчитанных потоков задается начальной температурой T_0 , давлением P_0 и составом газа η , который мы определим как отношение плотностей всей серы и разбавителя. Результаты расчета для одного набора параметров T_0 , P_0 и η приведены на рис. 1, где

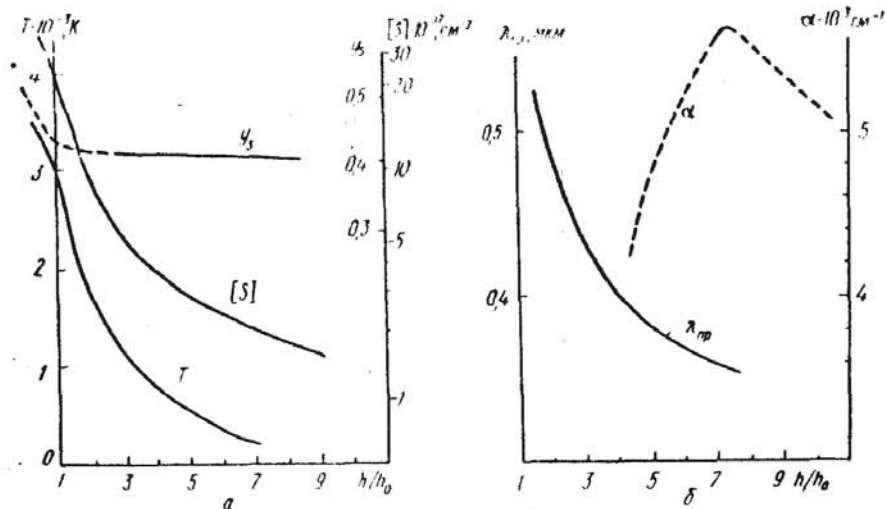


Рис. 1. Распределение вдоль сопла характеристик потока при $P_0 = 30$ атм, $T_0 = 4000$ К, $\eta = 0,2$ (газовая смесь S_2 : Аг, сопло с $h_0 = 0,2$ мм, $\theta = 30^\circ$, $R/h_0 = 10$).

$y_s = [S]/([S] + 2[S_2])$ — степень диссоциации серы, h/h_0 — относительная площадь поперечного сечения сопла (величина «раскрытия» сопла).

Из рис. 1, а видно, что уже сразу за критическим сечением рекомбинация «замораживается» — y_s практически перестает изменяться («замороженная» степень диссоциации $y_s = 0,41$, начальное значение $y_s^0 = 0,52$). «Замораживание» рекомбинации не означает ее прекращения, а соответствует тому, что в сверхзвуковой части сопла рекомбинация не успевает за изменением температуры, давления и пр., т. е. значение $[S]/[S_2]$ заметно не изменяется (y_s остается постоянной лишь в принятом на рис. 1 масштабе). В то же время скорость рекомбинации вполне достаточна, чтобы обеспечить накачку электронно-возбужденных состояний, т. к. $[S_2^*]$ на три—пять порядков меньше, чем $[S]$ и $[S_2]$. Из рис. 1 видно, что уже при $h/h_0 \geq 3$ газ охлаждается ниже 1000 К, при этом концентрации атомов еще значительны — $(2 \div 5) \times 10^{17}$ см⁻³. Согласно [13], в таких условиях должна возникать инверсия населенности $S_2(B, B'')$ по отношению к возбужденным колебательным уровням основного состояния. Фотопереходы в молекуле S_2 происходят в широком спектральном диапазоне. Инверсия населенности возникает сначала относительно высоких колебательных уровней основного состояния, т. е. на красном краю спектра излучения. С понижением температуры спектральная область, в которой существует инверсия, расширяется.

Можно ввести «предельную» длину волны света $\lambda_{пр}$, характеризующую частичную инверсию на электронно-колебательном переходе: при $\lambda < \lambda_{пр}$ свет поглощается, при $\lambda > \lambda_{пр}$ — усиливается. Из рис. 1, б видно, что при $h/h_0 > 3 \div 4$ усиление света должно наблюдаться во всей видимой части спектра. С использованием выражения (2) и сечений ускорения света на переходе $B^3\Sigma_u^- \rightarrow X^3\Sigma_g^-$ были рассчитаны коэффициенты усиления света α при различных λ . При расчете α учитывалось для

плеровское и ударное уширение отдельных электронно-колебательно-вращательных линий излучения. На рис. 1, б приведена зависимость $\alpha(h/h_0)$ для перехода

$$B, v' = 0 \rightarrow X, v'' = 12, \lambda = 0,427 \text{ мкм.} \quad (3)$$

Видно, что α существенно изменяется вдоль потока. Для $h/h_0 > 4$ это изменение связано с электронно-колебательной кинетикой состояний B и B'' . В широкой области значений h/h_0 $\alpha > 3 \cdot 10^{-3} \text{ см}^{-1}$.

Аналогичные результаты получены для фотопереходов при других λ . Например, для перехода

$$B, v' = 0 \rightarrow X, v'' = 14, \lambda = 0,45 \text{ мкм.} \quad (4)$$

При $h/h_0 > 4$ зависимость $\alpha(h/h_0)$ аналогична приведенной на рис. 1, б, но абсолютные значения α в три раза меньше.

Таблица 1

Характеристики рекомбинирующих потоков газа $S_2:Ar$

Номер потока	P_0 , атм	η	h/h_0	y_S	P , мм рт. ст.	T , К	$\alpha \cdot 10^3, \text{ см}^{-1}$ ($\lambda = 0,427 \text{ мкм}$)
	$T_0 = 4000 \text{ К}$						
1	30	1	8,5	0,25	136	820	2,5
2		0,33	7,4	0,34	136	650	5,1
3		0,2	7	0,41	160	610	4,6
4	45	0,1	6	0,51	180	600	4,5
5		0,2	7,2	0,33	240	620	6,9
6		0,1	6,7	0,43	240	580	5,4

Примечание. Скорости потоков в приведенных сечениях сопел — 1,5 — 1,7 км/с, числа Маха — 3,5 — 4.

Немонотонное изменение α вдоль потока наблюдается и для других начальных значений параметров. Характеристики потоков с инверсной населенностью в области максимума α для различных начальных параметров приведены в табл. 1. Как и для рис. 1 (поток 3 из табл. 1), для всех течений в сверхзвуковой части сопла рекомбинация «замораживается». Неизменность y_S (для $h/h_0 > 2$) означает, что поток характеризуется постоянным значением показателя адиабаты γ . Известно, что в таком случае все параметры потока зависят лишь от отношения h/h_0 и не зависят от конкретного вида сопла. Следовательно, наши результаты пригодны и для профилированных сопел, формирующих на выходе течения с высокой однородностью параметров поперек потока. Эти параметры для сопел с фиксированным значением h/h_0 будут совпадать с приведенными в табл. 1.

Из табл. 1 следует, что в широком диапазоне изменений P_0 и η значения P , T , α в неравновесной зоне потока остаются примерно одинаковыми. Важно, что в области максимального значения α реализуется высокое давление. Это давление существенно превышает соответствующую характеристику в резонаторе ГДЛ на колебательно-вращательных фотопереходах [16].

В ГДЛ используют набор (решетку) газодинамически согласованных друг с другом мелкомасштабных сопел, за которыми следует канал постоянного сечения, служащий активным объемом лазера. Размеры области, поперечные потоку, определяются числом сопел в решетке и ее высотой. Продольный размер активной области связан исключительно с кинетикой рабочих лазерных уровней, в частности с длиной, на которой сохраняется инверсная населенность. Из-за большого тепловыделения при рекомбинации и возникающего при этом дополнительного торможения сверхзвукового потока протяженность зоны инвер-

сии существенно зависит от разбавления рекомбинирующих частиц инертным газом. Так, для потока 1 из табл. 1 инверсия срывается, когда прореагирует 5 % атомов S. Для потоков 3 и 5 инверсионная населенность перехода (3) сохраняется до тех пор, пока не прореагирует 75 % атомов S, а в случае перехода (4) — пока не прореагируют все атомы. Оценка длины, на которых прореагирует 50 % атомов S, даст для потоков 3 и 5 соответственно значения 60 и 40 см.

4. Излучение рекомбинирующего Br при низких температурах и давлениях, превышающих 10 мм рт. ст., обусловлено фотопереходами

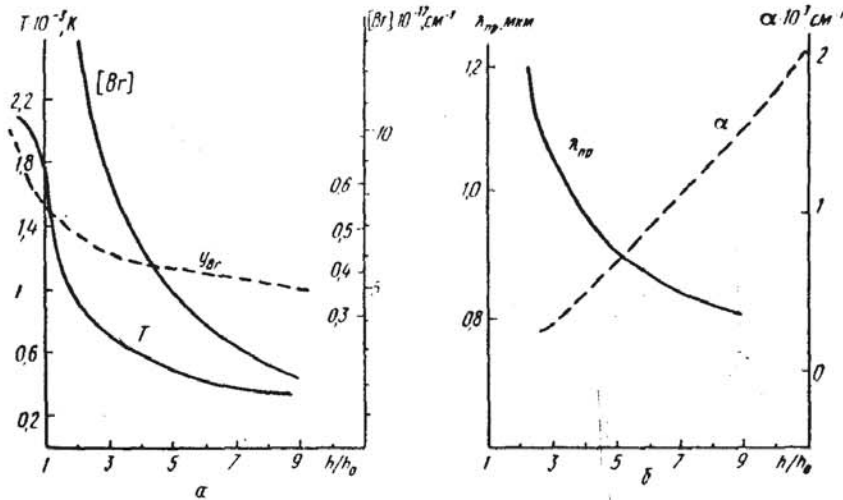


Рис. 2. То же, что и на рис. 1, для газовой смеси $\text{Br}_2:\text{Ar}$ при $P_0 = 30$ атм, $T_0 = 2200$ К, $\eta = 0,4$. Сопло такое же, как и на рис. 1.

$A^3\text{P}_{1u} \rightarrow X^1\Sigma_g^+$. Согласно [13], состояние A для Br_2 заселяется и тушится независимо от других электронно-возбужденных состояний мультиплетта. Поэтому электронная кинетика $\text{Br}_2(A)$ включает процессы типа (1a), (1б), (1г), (1д) (электронная конверсия, т. е. процесс (1в), отсутствует).

Как и в предыдущем случае, можно считать, что в состоянии A равновесие по колебаниям успевает установиться. Примем, что различные электронные состояния заселяются при рекомбинации со скоростями, пропорциональными их статистическому весу, и что в полную константу рекомбинации k вносят вклад только связанные состояния. Тогда для рекомбинации в состоянии A найдем $k_r^* = 0,33k$. Значение k для $M = \text{Ar}$ берем из [17], считаем рекомбинацию для $M = \text{Br}$, Br_2 в пять раз эффективнее, чем для $M = \text{Ar}$. Согласно [13], $k_q(\text{Ar}) = 10^{-13}$ см³/с, $k_q(\text{Br}) = 10^{-11}$ см³/с, $k_q(\text{Br}_2) = 10^{-12}$ см³/с.

Таблица 2
Характеристики рекомбинирующих потоков газа $\text{Br}_2:\text{Ar}$

Номер потока	h_0 , мм	P_0 , атм	T_0 , К	η	h/h_0	y_{Br}	P , мм рт. ст.	T , К	$\alpha \cdot 10^3$, см ⁻¹ ($\lambda = 1,2$ мкм)
1	0,2	30	2200	0,4	11	0,35	90	300	2
2			2800	0,4	12	0,66	70	340	1,4
3			2800	0,2	12	0,79	70	290	1,7
4	0,8	15	2200	0,4	12	0,41	45	290	0,6
5			2500	0,2	11	0,71	34	280	0,6

Примечание. Скорости потоков в приведенных сечениях сопел — 1,6—1,7 км/с, числа Маха — 5—5,3.

Результаты расчета для одного из рекомбинирующих течений Br_2 приведены на рис. 2. Видно, что характеристики потоков $\text{Br}_2:\text{Ar}$ и $\text{S}_2:\text{Ar}$ несколько различаются. Оказывается, что для Br_2 не удастся «заморозить» рекомбинацию даже для мелкомасштабных сопел. Температура вдоль сопел убывает медленнее, в холодной области потока α максимально. Эти особенности сохраняются и для других начальных параметров (табл. 2). Из табл. 2 видно, что для реакции рекомбинации атомов Br значения α меньше, чем для реакции рекомбинации атомов S . Однако можно отметить, что применение профилированных сопел с более быстрым раскрытием сразу за критическим сечением, позволяющих «заморозить» рекомбинацию, должно приводить к большим значениям α . Из результатов расчета следует также, что при использовании смеси $\text{Br}_2:\text{Ar}$ требуются исходные температуры, существенно более низкие, чем в случае смеси $\text{S}_2:\text{Ar}$. Давления в инвертированном потоке также достаточно велики.

5. Из полученных результатов следует, что газовые смеси $\text{Br}_2:\text{Ar}$ и $\text{S}_2:\text{Ar}$ могут быть использованы в качестве рабочих тел рекомбинационных ГДЛ на электронных фотопереходах. Разбавление рекомбинирующих сред инертным газом является принципиальным, т. к. способствует более быстрому охлаждению потоков, значительно увеличивает длительность существования инверсии в рекомбинирующем потоке. Последнее необходимо для снятия лазерной мощности. Для этих смесей в видимой и ближней ИК-области спектра достигаются значения $\alpha \geq 10^{-3} \text{ см}^{-1}$. Необходимые исходные параметры могут быть получены, например, с помощью ударных труб, плазмотронов и пр. (в случае использования S_2 необходимо применять прогревные ударные трубы).

Для рассматриваемых типов ГДЛ плоские сопла должны иметь критические сечения с $h=0,2-0,8$ мм, степень раскрытия 6—12. Для таких сопел при актуальных значениях входных параметров газа давления в потоках на выходе из сопел достаточно большие, так что возможно их восстановление до значений, превышающих 1 атм. Отметим также, что рассмотренные газовые смеси не требуют регенерации и могут быть использованы повторно, т. е. возможен рекомбинационный ГДЛ замкнутого цикла.

SUMMARY. The recombination gas-dynamic laser on two-atomic molecules S_2 and Br_2 is studied. Recombining flow parameters are found numerically. Taking into account kinetics of excited electron states of the S_2 and Br_2 molecules conditions for the population inversion are found and values of light gain are calculated for different wavelengths. The role of gas-diluent in the considered type of gas dynamic laser is under discussion.

1. Кочелав В. А., Кукибный Ю. А. О газодинамических фоторекомбинационных лазерах.— Квантовая электроника, Москва, 1975, 2, № 7, с. 1471—1480.
2. Химические лазеры / А. С. Башкин, В. И. Игошин, А. И. Никитин, А. Н. Ораевский.— М.: ВИНТИ, 1975.— 382 с.
3. Башкин А. С., Ораевский А. Н. Фоторекомбинационные лазеры.— Квантовая электроника, Москва, 1973, 1, № 1, с. 5—29.
4. Фонтен Б., Форестье Б. Об использовании рекомбинации трех тел для получения лазерной генерации.— Там же, 1976, 3, № 4, с. 897—905.
5. Башкин А. С., Куприянов Н. Л., Ораевский А. Н. О возможности создания лазера видимого диапазона на молекуле S_2 с химической накачкой.— Там же, 1978, 5, № 2, с. 421—423.
6. Leone S. R., Kosnik K. G. A tunable visible and ultraviolet laser on $\text{S}_2(B \rightarrow X)$.— Appl. Phys. Lett., 1977, 30, N 7, p. 346—350.
7. Koffend J. B., Field R. W. CW optically pumped molecular iodine laser.— J. Appl. Phys., 1977, 48, N 11, p. 4468—4472.
8. Wellegehausen B. Optically pumped Se_2 -laser.— Opt. Commun., 1982, 41, N 6, p. 437—442.
9. Предлазерные исследования рекомбинации атомов хлора / Н. С. Белокриницкий, Л. А. Кернажицкий, В. А. Кочелав, М. Т. Шпак.— Квантовая электроника, Москва, 1982, 9, № 2, с. 298—308.
10. Anderson J. D. Jr. A time dependant analysis for vibrational and chemical nonequilibrium nozzle flows.— AIAA J., 1970, N 3, p. 545—550.

11. Душин В. К. Метод численного решения уравнений химической кинетики. — Науч. тр. Ин-та механики МГУ, 1973, № 21, с. 35—42.
12. Глушко В. П. Термодинамические свойства индивидуальных веществ: В 2-х т. М.: Изд-во АН СССР, 1962. — Т. 1. 1162 с.
13. Измайлов Н. А., Кочелан В. А. Реакции радиационной рекомбинации, пригодные для использования в лазерах на электронных фотопереходах. — УФЖ, 1981, 26, № 6, с. 881—903.
14. Peterson D. A., Schlie L. A. Stable pure sulfur discharges and associated spectra. — J. Chem. Phys., 1981, 73, N 4, p. 1551—1566.
15. Howgate D. W., Barr T. A. Dynamics of the CS₂—O₂ flame. — Ibid., 1973, 59, N 6, p. 2815—2829.
16. Лосев С. А. Газодинамические лазеры. — М.: Наука, 1977. — 335 с.
17. Кондратьев В. П. Константы скорости газофазных реакций. — М.: Наука, 1971. — 351 с.

Ин-т полупроводников АН УССР, Киев

Получено 28.09.83