

УДК 533.6.011.72+536.24

ПОЛУЧЕНИЕ ИНВЕРСИИ ЗАСЕЛЕННОСТЕЙ КОЛЕБАТЕЛЬНЫХ
УРОВНЕЙ ПРИ КИНЕТИЧЕСКОМ ОХЛАЖДЕНИИ
ДВИЖУЩЕГОСЯ ГАЗА

ЛЕВИН В. А., СТАРИК А. М.

Анализируется возможность использования эффекта кинетического охлаждения газа, движущегося с небольшой дозвуковой или сверхзвуковой скоростью в поле резонансного непрерывного излучения, для создания инверсной среды.

Возможность получения инверсии на колебательном переходе $00^0_1 \rightarrow 10^0_0$ молекулы CO_2 при междумодовом резонансном поглощении излучения была рассмотрена в [1]. С другой стороны, в [2, 3] теоретически было показано, что при поглощении неподвижной средой, содержащей молекулы углекислого газа, излучения CO_2 -лазера поступательная температура газа может уменьшаться. Этот эффект был обнаружен экспериментально в чистом CO_2 при атмосферном давлении [4, 6] и связан с появлением потока энергии из поступательных степеней свободы движения молекул смеси в колебательные при междумодовом резонансном поглощении молекулами CO_2 излучения с длиной волны $\lambda = 10,6$ мкм. Использование этого эффекта для газа, движущегося со сверхзвуковой или небольшой дозвуковой скоростью и содержащего молекулы, обладающие большой скоростью $V-T$ -релаксации для двух различных типов колебаний, позволяет, как будет показано ниже, увеличить удельную энергию излучения, запасаемой на инверсном переходе при резонансном поглощении излучения по сравнению с методом создания инверсии, предложенным в [1].

Пусть газ состоит из молекул, обладающих по крайней мере тремя различными типами колебаний ν_q ($q=1, 2, 3$), которые не связаны резонансом, причем времена релаксации τ_{V-T} для двух из них много меньше времен внутримолекулярного $V-V'$ обмена ($\tau_{V-V'}$): $\tau_{V-T}(\nu_1) \approx \tau_{V-T}(\nu_2) \ll \tau_{V-V'}$. Кинетику процессов в такой молекулярной системе будем рассматривать, используя приближение гармонического осциллятора и модель локальных колебательных температур. Предположим, что $\theta_3 > \theta_1 > \theta_2$ (θ_q — характеристическая колебательная температура q -й моды), а поглощение излучения происходит на переходе $m \rightarrow n$ (уровни m и n принадлежат модам ν_2 и ν_3 соответственно, $m\theta_2 < n\theta_3$). Если длина зоны воздействия излучения, интенсивность которого не меняется во времени ($I = \text{const}$), $l_{ab} < l_{V-V'} < l_{V-T}(\nu_3)$, то изменение среднего числа квантов в каждой моде ν_q можно описать следующей системой кинетических уравнений:

$$\frac{d\varepsilon_1}{dt} = \frac{P}{KT} (\varepsilon_{10} - \varepsilon_1) W_{q0}^i \gamma_i \quad (1)$$

$$\frac{d\varepsilon_2}{dt} = \frac{P}{KT} \left[-\frac{\mu^2 k_\nu I l_2}{\rho^2 N_A^2 h \nu_{mn} \gamma_i} - (\varepsilon_2 - \varepsilon_{20}) W_{20}^i \gamma_i \right] \quad (2)$$

$$\frac{d\varepsilon_3}{dt} = \frac{P}{kT} \left[l_3 \frac{\mu^2 k_\nu I}{\rho^2 N_A^2 h \nu_{mn} \gamma_i} \right], \quad \varepsilon_q = g_q \left[\exp\left(\frac{\theta_q}{T_q}\right) - 1 \right]^{-1} \quad (3)$$

Здесь P , ρ , T — давление, плотность и поступательная температура газа; T_q — локальная колебательная температура в q -м типе колебаний; g_q — его кратность вырождения; K — постоянная Больцмана; N_A — число

Авогадро, h — постоянная Планка; ν_{mn} — частота перехода; k_ν — спектральный показатель поглощения; I — интенсивность излучения (его частота ν_{mn}); γ_i — молярная доля поглощающего компонента; W_{q0} — скорость $V-T$ -релаксации q -й моды; l_q — количество квантов, теряемых или приобретаемых модой q при индуцированных переходах ($l_2=m$, $l_3=n$); $\varepsilon_{q0}=\varepsilon_q(T)$; μ — молекулярный вес газа.

Рассмотрим одномерное установившееся движение такой среды в канале постоянного сечения. Как обычно, будем полагать, что между вращательным и поступательным движением молекул существует термодинамическое равновесие. В приближении невязкого нетеплопроводного газа справедлива следующая система уравнений:

$$\begin{aligned} \frac{d(\rho U)}{dx} &= 0, & \frac{d}{dx}(\rho U^2 + P) &= 0 \\ \frac{d}{dx} \left[\rho U \left(\frac{U^2}{2} + c_p T + \sum_{q=1}^3 \frac{\theta_q R}{\mu} \varepsilon_q \right) \right] &= k_\nu I & (4) \\ \frac{d}{dx}(\rho U \varepsilon_q) &= \rho Q_{\nu^q}, & P &= \frac{\rho RT}{\mu} \end{aligned}$$

Здесь U — скорость; c_p — мольная теплоемкость при $P=\text{const}$, определенная без учета теплоемкости колебательных степеней свободы; Q_{ν^q} — интенсивность источников колебательно-возбужденных частиц.

Проводя линеаризацию газодинамических уравнений системы (4) по малому параметру $\delta=R/(\mu H) \sum_q \theta_q \varepsilon_q$, где H — энтальпия единицы массы газа, можно получить следующие выражения для изменения P , ρ , U , T в зоне поглощения:

$$\begin{aligned} T' &= T - T_a = \frac{1 - \kappa M_a^2}{c_p(1 - M_a^2)} J, & U' &= U - U_a = \frac{(\kappa - 1) M_a^2}{(1 - M_a^2) U_a} J & (5) \\ P' &= P - P_a = -\frac{\rho_a(\kappa - 1) M_a^2}{1 - M_a^2} J, & \rho' &= \rho - \rho_a = -\frac{P_a(\kappa - 1) \kappa}{(1 - M_a^2)} J \end{aligned}$$

$$J = \int_a^\infty \frac{\theta_2 P R}{\mu K T U} W_{20}^i \gamma_i \left[\varepsilon_2 - \varepsilon_{20} + (\varepsilon_1 - \varepsilon_{10}) \frac{\theta_1}{\theta_2} \frac{W_{10}^i}{W_{20}^i} \right] dx \quad (6)$$

$$M_a = \frac{U_a}{\sqrt{\kappa R T_a / \mu}}, \quad \kappa = \frac{c_p}{c_p - R / \mu}$$

Здесь индексом a обозначены параметры в начале зоны воздействия ($x=a$). Из полученных решений следует, что при $\theta_1 \approx \theta_2$, $W_{10}^i \approx W_{20}^i$, $\varepsilon_1 = \varepsilon_2$ и $\varepsilon_{10} = \varepsilon_{20}$ величина изменения макроскопических параметров возрастает вдвое. Физически этот факт объясняется увеличением вдвое числа частиц на уровне m , а следовательно, и энергии, которая может перейти из поступательных в колебательные степени свободы при кинетическом охлаждении.

Для оценки сверху величины интеграла J рассмотрим процессы, происходящие в системе при резонансном поглощении излучения на переходе $m \rightarrow n$.

Пусть $\tau_{v-T}(v_1) > \tau_{v-T}(v_2)$ и на длине $l_{v-T}(v_2) \approx \tau_{v-T}(v_2)U$ $\varepsilon_1 = \varepsilon_{10}$, а переход $m \rightarrow n$ при $x=c=a+l_{v-T}(v_2)$ полностью насыщается, т. е. $k_v=0$. Относительные заселенности уровней m и n в невозмущенном потоке равны $y_{m0} = \exp(-\theta_2 m/T)$, $y_{n0} = \exp(-\theta_3 n/T)$. После насыщения поглощающего перехода $y_m = y_n = (y_{m0} + y_{n0})/2$, а поступательная температура при этом изменится на величину T' ($T_c = T_a - T'$). Учитывая, что

$$(\varepsilon_{20} - \varepsilon_2)|_{x=a} = 0, \quad \varepsilon_{20}|_{x=c} = g_2 \{ \exp[m\theta_2/(T_a - T')] - 1 \}^{-1}$$

для оценки J сверху можно получить

$$J = \frac{\rho(\vartheta) N_A R \theta_2 W_{20}^i}{U(\vartheta) \mu^2} \gamma_i g_2 \left\{ \left[\exp\left(\frac{m\theta_2}{T_2}\right) - 1 \right]^{-1} - \left[\exp\left(\frac{m\theta_2}{T_a - T'}\right) - 1 \right]^{-1} \right\} \quad (7)$$

$$T_2 = \frac{m\theta_2 T_a}{n\theta_3 + m\theta_2 - 2T_a \ln^{1/2}}$$

Здесь $\rho(\vartheta)$ и $U(\vartheta)$ — значения ρ и U в некоторой точке ϑ интервала $[a, c]$ $a < \vartheta < c$. В этом случае удается получить алгебраическое уравнение для определения температуры в конце зоны поглощения

$$T_c = T_a + \frac{1 - \kappa M_a^2}{(1 - M_a^2) c_p} \frac{\rho(\vartheta) N_A R \theta_2 W_{20}^i \gamma_i}{U(\vartheta) \mu^2} g_2 \times$$

$$\times \left\{ \left[\exp\left(\frac{m\theta_2}{T_2}\right) - 1 \right]^{-1} - \left[\exp\left(\frac{m\theta_2}{T_c}\right) - 1 \right]^{-1} \right\} \quad (8)$$

Поскольку обычно T_c и T_2 одного порядка, то вторым членом в фигурных скобках пренебрегать нельзя.

Пусть далее при $x > c$ начинается обмен энергией между модой v_1 (будем интересоваться заселенностью уровня p , причем $m\theta_2 < p\theta_1 < n\theta_3$) и поступательными степенями свободы, т. е. $l_* = c - a \leq l_{v-T}(v_1)$. Поскольку $\varepsilon_1 < \varepsilon_{10}$ [$\varepsilon_{10} = \varepsilon_1(T_c)$], то $d\varepsilon_1/dt < 0$ и запас колебательных квантов в моде v_{11} , а следовательно, и заселенность уровня p будут уменьшаться. В результате релаксации колебательной энергии моды v_1 при $x > l_{v-T}(v_1)$ установится термодинамическое равновесие между поступательным хаотическим движением молекул и колебаниями типа v_1 , характеризующееся некоторой температурой T_b ($T_c < T_b < T_a$). Учитывая, что при $x > c$

$$J = \sum_i g_i \frac{\theta_i R}{\mu} \gamma_i [\varepsilon_i(c) - \varepsilon_i(b)]$$

Уравнение для T_b можно теперь представить в виде

$$T_b = T_c + \frac{(1 - \kappa M_c^2) \theta_1 R}{(1 - M_c^2) c_p \mu} g_1 \gamma_1 \left\{ \left[\exp\left(\frac{p\theta_1}{T_a}\right) - 1 \right]^{-1} - \left[\exp\left(\frac{p\theta_1}{T_b}\right) - 1 \right]^{-1} \right\} \quad (9)$$

Обычно для рассматриваемого класса явлений для оценок можно положить $T_b = T_c$. Таким образом, при $x=b$ относительные заселенности уровней m , n и p будут равны

$$y_m = \exp\left(-\frac{m\theta_2}{T_b}\right), \quad y_n = \exp\left(-\frac{n\theta_3}{T_2}\right), \quad y_p = \exp\left(-\frac{p\theta_1}{T_b}\right)$$

Если $T_2 p \theta_1 > T_b n \theta_3$, то на переходе $n \rightarrow p$ возникает инверсия. Энергия, запасаемая при этом в единице массы газа на инверсном переходе, равна

$$N_p^n = (n \theta_3 - p \theta_1) \frac{R}{\mu} \left(\frac{g_3 y_n}{1 - y_n} - \frac{g_1 y_p}{1 - y_p} \right) \quad (10)$$

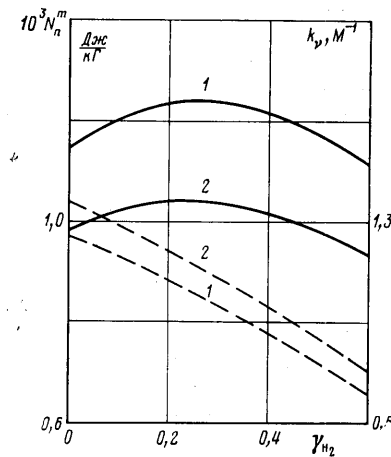
При отсутствии эффекта кинетического охлаждения, как это было, например, в [1], $y_p' = \exp(-p \theta_1 / T_a) > y_p$ и на инверсном переходе будет запасено меньше энергии, чем в рассматриваемом случае. Максимальное изменение температуры в зоне поглощения резонансного излучения, как это следует из (8), будет происходить при течении газа со скоростью, близкой к звуковой ($M_a \approx 1 \pm \delta$, $\delta > 0$). Если при этом $\kappa^{-1/2} M_a < 1$, то газ будет нагреваться, а при $M_a > 1$ — охлаждаться. Охлаждение газа будет также происходить и при $0 < M_a < \kappa^{-1/2}$, однако изменение температуры здесь минимально, а при $M_a = \kappa^{-1/2}$ вообще отсутствует ($T' = 0$) [6].

Оценку эффективности предлагаемого способа получения инверсии проведем на примере газа CS_2 , времена $V - T$ -процессов для симметричных (v_1) и деформационных (v_2) колебаний в котором при $T \approx 1000$ К сравнимы [7] и выполняется условие $\tau_{V-T}(v_2) \ll \tau_{V-T}(v_1) \ll \tau_{V-V'}(v_i)$. Будем интересоваться инверсией на переходе $00^0 1 \rightarrow 20^0 0$ (длина волны $\lambda = 45,6$ мкм) при поглощении излучения, частота которого резонансна частоте перехода $02^0 0 \rightarrow 00^0 1$ ($\lambda = 13,7$ мкм). Для молекулы CS_2 : $\theta_1 = 1000$ К, $\theta_2 = 511$ К,

$\theta_3 = 2193$ К. Расчеты, проведенные по формулам (8) — (10), показали, что при $T_a = 1000$ К и $M_a = 1,02$ глубина охлаждения может достигать ~ 50 К. Величина N_{200}^{001} при этом на 40% превышает соответствующие значения удельной энергии излучения, реализуемые при отсутствии эффекта кинетического охлаждения.

Другим возможным газом, в котором выполняются условия, необходимые для получения положительного эффекта, является смесь $H_2O - H_2$. Отметим, что для чистого водяного пара $\tau_{V-T}(v_2) \ll \tau_{V-T}(v_1) \approx \tau_{V-V'}(v_i)$ [8]. Исследование течения смеси $H_2O - H_2$ в поле излучения, частота которого практически совпадает с частотой колебательно-вращательного перехода $020(5_{50}) \rightarrow 001(6_{33})$, проводилось путем численного моделирования. Выражения для Q_{V^q} для смеси $H_2O - H_2$ записывались в виде

$$Q_{V^q} = \left(\frac{d\epsilon_q}{dt} \right)_{V-V'} + \left(\frac{d\epsilon_q}{dt} \right)_{V-T} + \left(\frac{d\epsilon_q}{dt} \right)_I \quad (11)$$



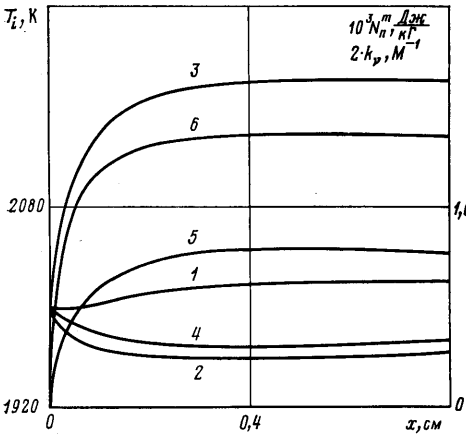
Фиг. 1

Первые два слагаемых в (11) ответственны за внутри- и межмолекулярный колебательный обмен и $V - T$ -релаксацию, а третий определяет изменение числа колебательных квантов в q -й моде при наличии излучения и имеет вид

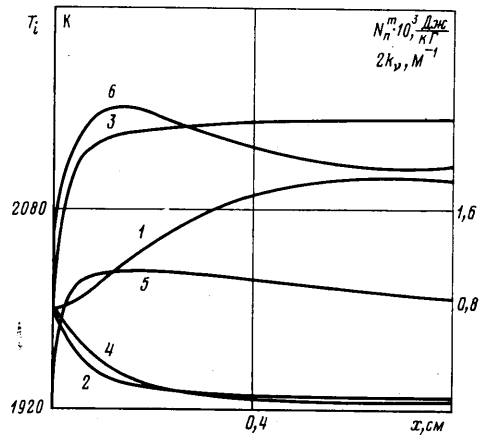
$$\left(\frac{d\epsilon_q}{dt} \right)_I = (\delta_{3q} - 2\delta_{2q}) \frac{k_v I \mu}{\rho N_A h \nu_{mn} \gamma_{H_2O}}$$

Здесь δ_{pq} — символ Кронекера; индексы $q = 1, 2, 3, 4$ здесь и далее соответствуют симметричным, деформационным, асимметричным колебаниям молекул H_2O и колебательно-возбужденным молекулам H_2 . Выражения для первых двух слагаемых в (11) и соответствующие им вероятности элементарных процессов были взяты из работ [8, 9]. При поглощении парами воды излучения, частота которого $\nu_{mn} = 357,51$ см⁻¹ равна частоте центра линии перехода $020(5_{50}) \rightarrow 001(6_{33})$, инверсия возникает на линиях как P , так и R -ветви перехода $001 - 100$. Будем интересоваться величиной k_v и N_m^n для двух наиболее сильно излучающих переходов: $001(6_{51}) \rightarrow 100(7_{44})$ и $001(4_{31}) \rightarrow 100(5_{24})$. Длины волн этих переходов соответственно равны 208 и 160 мкм. Расчет показателя усиления и удельной энергии

излучения проводился так же, как в [9]. Коэффициент Эйнштейна для перехода $020(5_{50}) \rightarrow 001(6_{33})$ в соответствии с [10] принимался равным 6 с^{-1} . На фиг. 1 представлены результаты расчета величины N_m^n (сплошные кривые) и k_v (штриховые) для двух рассматриваемых переходов $001(6_{31}) \rightarrow 100(7_{44}) - 1$ и $001(4_{31}) \rightarrow 100(5_{24}) - 2$ при течении смеси $\text{H}_2\text{O} - \text{H}_2$ ($\gamma_{\text{H}_2} = 0-0,6$) с начальными параметрами $T_a = 2000 \text{ K}$, $P_a = 0,005 \text{ ага}$, $M_a = 1,2$ в поле резонансного излучения $\nu_{mn} = 357 \cdot 51 \text{ см}^{-1}$ с $I = 500 \text{ Вт/см}^2$. Видно, что с увеличением содержания H_2 в смеси от $\gamma_{\text{H}_2} = 0$ до $\gamma_{\text{H}_2} = 0,3$ величина удельной энергии излучения возрастает и при $\gamma_{\text{H}_2} = 0,3$ превышает соответствующие значения N_m^n



Фиг. 2



Фиг. 3

для чистого водяного пара в 1,1 раза. При дальнейшем увеличении γ_{H_2} величина N_m^n уменьшается. Зависимость показателя усиления от γ_{H_2} иная. Его величина монотонно уменьшается с увеличением доли H_2 в смеси. Для объяснения зависимостей $N_m^n = f(\gamma_{\text{H}_2})$ и $k_v = f(\gamma_{\text{H}_2})$ рассмотрим изменение неравновесных параметров газа в зоне поглощения для сред с различным содержанием молекулярного водорода ($\gamma_{\text{H}_2} = 0$ и $0,2$). Эти распределения представлены на фиг. 2, 3 соответственно. Здесь цифрами 1-6 обозначены кривые, характеризующие изменение колебательных температур симметричной, деформационной и асимметричной мод H_2O (T_1, T_2, T_3), поступательной температуры T , удельной энергии излучения N_m^n и показателя усиления k_v .

Для смеси $\text{H}_2\text{O} - \text{H}_2$ характерно более слабое увеличение T_1 по длине зоны поглощения, чем для чистого водяного пара. Этот факт объясняется увеличением скорости $V - T$ -релаксации симметричной моды молекулы H_2O при добавлении H_2 . Здесь не происходит кинетического охлаждения этой моды ($T_1 \neq T$), однако и в этом случае уменьшение заселенности уровня 100 при введении молекулярного водорода приводит к увеличению N_m^n , несмотря на уменьшение общего числа инверсных частиц в единице объема газа. В то же время этот эффект не может компенсировать уменьшение показателя усиления вследствие снижения плотности газа и уменьшения молярной доли H_2O в смеси, так как зависимость $k_v = f(\gamma_{\text{H}_2})$ более сильная, чем $N_m^n = f(\gamma_{\text{H}_2})$.

Действительно, легко показать, что

$$k_v \sim \mu_{\text{H}_2\text{O}} (1 - \alpha \gamma_{\text{H}_2}) (1 - \gamma_{\text{H}_2}), \quad N_m^n \sim (1 - \gamma_{\text{H}_2}) / (1 - \alpha \gamma_{\text{H}_2}) \mu_{\text{H}_2\text{O}}$$

$$\alpha = \frac{\mu_{\text{H}_2\text{O}} - \mu_{\text{H}_2}}{\mu_{\text{H}_2\text{O}}}$$

Рассмотренные особенности течения смеси $\text{H}_2\text{O} - \text{H}_2$ в поле резонансного излучения и приводят к различным зависимостям N_m^n и k_v от содержания молекулярного водорода в смеси.

Из представленных результатов следует, что предлагаемый метод создания инверсии в газодинамических течениях позволяет значительно увеличить эффективность преобразования энергии при получении излучения дальнего инфракрасного и субмиллиметрового диапазонов.

ЛИТЕРАТУРА

1. Балыкин В. И., Голгер А. Л., Коломыйский Ю. Р., Летохов В. С., Туманов О. А.— CO₂-лазер на 10,6 мкм с оптической накачкой на 9,6 мкм.— Письма в ЖЭТФ, 1974, т. 19, в. 7, с. 482—485.
2. Wood A. D., Satas M., Gerry E. T. Effects of 10,6 μ laser induced air chemistry on the atmospheric refractive index.— Appl. Optics, 1971, v. 10, № 8, p. 1877—1884.
3. Гордиец Б. Ф., Осипов А. И., Хохлов Р. В. Об охлаждении газа при прохождении мощного излучения CO₂-лазера через атмосферу.— Ж. техн. физ., 1974, т. 44, № 5, с. 1063—1069.
4. Aung H., Katayama M. Interferometric studies of transient cooling and heating of CO₂ induced by 10,6 μ laser pulse and vibration-translation relaxation.— Jap. J. Appl. Phys., 1975, v. 14, № 1, p. 82—86.
5. Гордиенко В. М., Горшков В. А., Панченко В. Я., Сухоруков А. П. Кинетическое охлаждение смеси газов CO₂-N₂-излучением CO₂-лазера.— ЖЭТФ, 1977, т. 13, в. 3, с. 874—883.
6. Старик А. М. О кинетическом охлаждении движущегося газа.— Изв. АН СССР. МЖГ, 1982, № 3, с. 127—138.
7. Волков А. Ю., Демин А. И., Епихин В. Н., Кудрявцев Е. М., Соболев Н. Н. Исследование газодинамического CS₂-лазера с целью повышения к.п.д. и расширения спектрального диапазона этого типа лазера.— Тр. физ. ин-та АН СССР, 1979, т. 113, с. 168—183.
8. Левин В. А., Старик А. М. Колебательный энергообмен в смесях H₂O-H₂-O₂ при быстром охлаждении в сверхзвуковых соплах.— Изв. АН СССР. МЖГ, 1980, № 2, с. 101—110.
9. Левин В. А., Старик А. М. О возможности генерации излучения субмиллиметрового диапазона при охлаждении смеси H₂O-H₂ в сверхзвуковых соплах.— Письма ЖТФ, 1979, т. 5, в. 11, с. 682—685.
10. Benedict W. S., Pollack M. A., Tompkinson W. J. The water-vapor laser.— IEEE J. Quant. Electron., 1969, v. 5, № 2, p. 108—124.

Москва

Поступила в редакцию
6.IV.1981