Оптическая накачка химических HF-лазеров на основе смесей NF₃-H₂ и ClF₅-H₂ открытым поверхностным разрядом в режиме волны просветления

М.Ю.Артемьев^{*}, А.С.Башкин^{**}, Л.Д.Михеев^{*}, В.М.Нестеров^{*}, М.Л.Сентис^{***}, В.И.Черемискин^{*}

Впервые в химическом лазере получена лазерная генерация на HF при оптической накачке открытым излучающим разрядом с использованием NF₃ и ClF₅ в качестве доноров атомов фтора и реализован режим волны просветления. Источником оптической накачки служил поверхностный разряд открытого типа, под действием которого скорость распространения волны просветления достигала $\sim 8 \text{ км/с}$. Образование последней приводит к быстрой (со сверхзвуковой скоростью) смене рабочего вещества в зоне лазерной генерации, обеспечивая близкую к единице квантовую эффективность лазерной генерации. Найден оптимальный для лазера данной конструкции состав рабочей смеси (NF₃:H₂:Kr = 6:10:125 мм рт. ст.), в которой получена энергия лазерной генерации ~ 0.4 Дж в импульсе длительностью 3.5 Джс в смеси Cl₅:H₂:Kr = 3:20:50 мм рт. ст.) получены при использовании ClF₅ в качестве донора атомов фтора.

Ключевые слова: химический лазер, фотодиссоциация, поверхностный разряд.

1. Введение

Принцип действия рассматриваемых в настоящей статье HF-лазеров основан на нецепных механизмах возбуждения. Такие лазеры хотя и уступают по эффективности лазерам на цепных реакциях, являются более простыми и безопасными с точки зрения приготовления рабочей смеси и, следовательно, более удобными для ряда практических применений. Несмотря на многообразие реакций нецепного характера, используемых для реализации лазерной генерации, и большое число работ, посвященных исследованию лазерных характеристик активных сред на их основе, потенциальные возможности HF-лазеров на нецепных реакциях изучены далеко не полностью.

Дело в том, что подавляющее число исследований было выполнено при ламповой накачке. Систематические же исследования нецепных реакций возбуждения молекул HF, инициируемых излучением открытого разряда, практически отсутствуют. В связи с отсутствием оболочки, разделяющей плазму разряда и активную среду лазера, открытый разряд отличается от лампывспышки значительно более высокой интенсивностью излучения, достигающей в спектральной полосе фотодиссоциации доноров атомарного фтора сотен кВт/см², возможностью реализации значительно более короткого импульса накачки и более широким спектральным диапазоном излучения, включающим ВУФ область. Послед-

Поступила в редакцию 14 июня 2000 г., после доработки – 11 февраля 2001 г.

4 Квантовая электроника, т.31, № 7

нее обстоятельство позволяет увеличить эффективность накачки известных рабочих смесей, которые ранее использовались при накачке лампой-вспышкой, и значительно расширить класс доноров атомов фтора (или водорода) за счет молекул, обладающих континуумами поглощения в ВУФ области спектра.

Кроме того, оптическая накачка открытым разрядом позволяет реализовать новый режим возбуждения, который состоит в инициировании свободной волны просветления в активной среде и приводит к быстрой (со сверхзвуковой скоростью) смене активной среды в зоне генерации за время 0.1–1 мкс. В результате отсутствует влияние самодезактивации активных молекул HF на выходные параметры лазера при длительной (свыше 10 мкс) накачке и сохраняется высокий удельный энергосъем.

В настоящей работе впервые продемонстрирована лазерная генерация на смесях NF_3-H_2 и ClF_5-H_2 , фотоинициируемых излучением открытого поверхностного разряда. Предыдущие попытки получить генерацию при инициировании смеси NF_3-H_2 лампой-вспышкой были безуспешными [1]. Преимуществом этой молекулы является прежде всего ее широкий спектр поглощения, лежащий, главным образом, в ВУФ области спектра. Кроме того, наряду с первичным фотолизом дополнительный (хотя и небольшой) вклад в образование атомарного фтора возможен при вторичном фоторазложении NF_2 радикалов, которые имеют диффузное поглощение в области 250–270 и 158–170 нм [2, 3].

Интерес к молекуле ClF₅, которая ранее подробно исследовалась при фотоинициировании лампой-вспышкой, как к донору атомов фтора продиктован тем, что, с одной стороны, газообразный ClF₅ в смеси с водородом не подвержен самовоспламенению, а с другой – тем, что эта молекула отличается высокой эффективностью инициирования химической реакции накачки: на один поглощенный фотон инициирующего излучения приходилось 3 фотона лазерной генерации [4].

^{*}Физический институт им. П.Н.Лебедева, Россия, 119991 Москва, Ленинский просп., 53; тел./факс: (095) 135 87 03;

e-mail: mikheev@sci.lebedev.ru **HПО «Энергомаш», Россия, 141400 Химки Моск. обл., ул. Бурденко, 1 ***Institute de Recherche sur les Phenomenes Hors Equilibre, UMR 6594

^{***}Institute de Recherche sur les Phenomenes Hors Equilibre, UMR 6594 CNRS, Aix-Marseille I and II Universities, Campus de Luminy, case 918, 13288 Marseille Cedex 09, France



Рис.1. Спектры поглощения NF₃ [5] и ClF₅ [6], а также спектральное распределение лучеиспускательной способности абсолютно черного тела с различной температурой T. Масштаб кривой для ClF₅ растянут по оси ординат в 3.5 раза.

Для обоих соединений характерно хорошее спектральное согласование полос поглощения с планковским распределением фотонов по длинам волн для излучения абсолютно черного тела с температурой 20–30 кК, типичной для открытого разряда (рис.1).

Цель настоящей работы – исследование особенностей лазерной генерации в смесях, содержащих указанные молекулы, при их инициировании излучением открытого разряда.

2. Экспериментальная установка

Схема установки приведена на рис.2. Лазерная кювета была изготовлена из тефлона, химически стойкого к воздействию F_2 и HF, в виде прямоугольной камеры размером $5 \times 7 \times 27$ см, на торцах которой устанавливались оптические окна из CaF₂. Световая апертура лазера имела диаметр 2.8 см. Оптический резонатор состоял из плоского алюминиевого зеркала и выходного окна лазерной кюветы. Поверхностный разряд длиной 19 см развивался между двумя электродами по поверхности тефлоновой трубки диаметром 7 мм, расположенной в нижней части лазерной камеры. Для линейной стабилизации поверхностного разряда внутрь тефлоновой трубки был вставлен металлический стержень, электрически соединенный с высоковольтным электродом.

Питание разряда осуществлялось от конденсатора $C_{\rm st}$



Рис.2. Электрическая схема экспериментальной установки.



Рис.3. Осциллограммы импульса УФ излучения поверхностного разряда (верхний луч) и разрядного тока (нижний луч).

емкостью 11 мкФ, который заряжался до напряжения $U_C = 20$ кВ (запасаемая энергия 2.2 кДж). Коммутация тока производилась с помощью газового разрядника, заполненного азотом. При подаче напряжения на электроды вдоль поверхности тефлоновой трубки развивается скользящий разряд барьерного типа, обусловленный токами смещения в материале трубки. Барьерный разряд замыкает межэлектродный промежуток и вызывает развитие основного разряда. Образующийся при этом шнур интенсивно излучающей плазмы расширяется с радиальной скоростью 1-2 км/с. Яркостная температура разряда не измерялась, но при данных электрических параметрах питающей цепи ее типичное значение лежит в диапазоне 20-30 кК [7].

Временные профили разрядного тока и падения напряжения на разрядном промежутке измерялись с помощью пояса Роговского и малоиндуктивного омического делителя (сопротивления R_1 и R_2) соответственно, а лазерная энергия и форма импульса лазерного излучения – калориметром и Ge – Au-детектором. Форма импульса УФ излучения поверхностного разряда (рис.3) наблюдалась через выходное окно лазерной кюветы с помощью фотодетектора с фильтром.

Обычно в лазерах с оптической накачкой излучением открытого разряда для увеличения мощности излучения источника накачки и подавления роста температуры газовой смеси из-за выделяющейся в экзотермических реакциях энергии используются буферные газы, такие как N2 или инертные газы. Наши предварительные исследования Не и Kr в качестве буферных газов показали, что наилучшие результаты дает Kr. Скорее всего, это объясняется тем, что Kr, имеющий более низкий потенциал ионизации, обеспечивает более высокую яркостную температуру поверхностного разряда, поэтому в экспериментах в качестве буферного газа использовался Kr. Все реагенты (NF₃ (ClF₅), H₂ и Kr) смешивались непосредственно в лазерной кювете. Используемые газы имели следующую чистоту: NF3 - 99.63 %, ClF5 - 99.9 %, H2 -99.995 %, Kr – 99.98 %.

3. Результаты и их обсуждение

Исследование зависимости выходной энергии HF-лазера от парциальных давлений газов NF₃, H₂ и Kr показывает, что оптимальное давление компонентов смеси состава NF₃:H₂:Kr близко к 6:10:125 мм рт.ст. Из рис.4 следует, что при варьировании давления буферного газа и неизменных парциальных давлениях NF₃ и H₂ выход-



Рис.4. Зависимость выходной энергии HF-лазера от парциального давления Kr при запасаемой энергии $E_{\rm st}=2.2$ кДж.

ная энергия HF-лазера слабо зависит от давления криптона, т. е. яркостная температура поверхностного разряда от давления Kr в области давлений выше 25 мм рт. ст. практически не зависит. Большинство экспериментов, обсуждаемых в настоящей работе, выполнялось при давлении криптона 50 мм рт.ст.

Анализ кинетики активной среды на основе смеси NF_3-H_2 начнем с рассмотрения следующих реакций, которые играют наиболее важную роль в образовании HF:

$$NF_3 + hv \to NF_2 + F, \tag{1}$$

$$NF_2 + hv \rightarrow NF(X) + F,$$
 (2)

$$F + H_2 \rightarrow HF(v) + H,$$
 (3)

$$H + NF_2 \rightarrow HF(v) + NF(X^3\Sigma, a^{1}\Delta, b^{1}\Delta),$$
(4)

$$F + NF_2 + Kr \to NF_3 + Kr, \tag{5}$$

$$\mathbf{H} + \mathbf{NF}(a) \to \mathbf{HF}(v=0) + \mathbf{N}.$$
 (6)

Константы скоростей реакций таковы: $k_{3v} = f_v \times \exp(-800 \text{K}/T)2.7 \cdot 10^{-10} \text{ см}^3/\text{с}$, $f_1:f_2:f_3 = 0.17:0.55:0.28$ [8], $k_{4v} = g_v 1.3 \cdot 10^{-11} \text{ см}^3/\text{с}$, $g_0:g_1:g_2:g_3 = 0.65:0.27:0.07:0.01$, $k_X:k_a:k_b = 0.07:0.91:0.02$ [9], $k_5(\text{Ar}) \approx 10^{-30} \text{ см}^6/\text{c}$ [10], $k_6 = 2.5 \cdot 10^{-13} \text{ см}^3/\text{c}$ [10].

Константа скорости реакции рекомбинации атомов F с NF₂ при участии Kr в качестве третьей частицы неизвестна. Для этого процесса взято значение k_5 , измеренное для Ar в качестве третьей частицы [10]. Вклад вторичного фотолиза радикалов NF₂ в скорость накачки незначителен. Это связано с тем, что указанные радикалы обладают довольно узкими (~20 и ~10 нм) континуумами поглощения в УФ ($\lambda = 260$ нм) и ВУФ ($\lambda = 164$ нм) диапазонах спектра соответственно, при этом сечения поглощения σ_{λ} в максимумах составляют соответственно 1.5·10⁻¹⁸ см² [2] и 2.1·10⁻¹⁸ см² [3].

При яркостной температуре источника накачки 30 кК потоки фотонов в эти полосы поглощения примерно одинаковы и равны ~ $1.6 \cdot 10^{23}$ фот./(см²·с), что отвечает скорости образования атомов F при фотолизе NF₂ излучением бесконечного плоского источника $\sigma_{\lambda}I_0 = 5.8 \cdot 10^5$ с⁻¹, где I_0 – суммарный поток фотонов в полосы поглощения NF₂. Это значительно меньше соответствующей величины для фотодиссоциации молекул NF₃, равной 2.4 · 10⁶ с⁻¹. Кроме того, как будет показано далее, концентрация радикалов в несколько раз ниже концентрации исходных молекул.

В условиях избытка H₂, когда скорость реакции накачки (3) превышает скорость образования атомов F при фотолизе, пространственное распределение скорости накачки $Q_p(r, t)$ в реакции (3) должно практически совпадать с пространственным распределением скорости образования атомов F. В случае упрощенной модели, описывающей возбуждение активной среды излучением источника накачки цилиндрической формы, скорость накачки может быть представлена в виде

$$Q_{\rm p}(r,t) \equiv k_{3v} N_{\rm F} N_{\rm H_2} \sim N_{\rm NF_3} f(r,t),$$

где $N_{\rm F}$, $N_{\rm H_2}$ и $N_{\rm NF_3}$ – концентрации F, H₂, и NF₃; f(r, t) – функция, описывающая скорость возбуждения как функцию расстояния *r* от оси поверхностного разряда.

Пространственное распределение функции f(r, t) определяется ослаблением излучения молекулами NF₃ в соответствии с законом Бугера и цилиндрической геометрией источника накачки, которая дает поправку в виде коэффициента R/r, где R – радиус источника:

$$f(r,t) = \frac{R}{r} \int \sigma_{\lambda} I_0^{\lambda} \exp\left[-\sigma_{\lambda} \int_R^r N_{\rm NH_3}(r,t) dr\right] d\lambda.$$

Здесь I_0^{λ} – спектральная плотность планковской излучательной способности.

На рис.5 показаны функции распределения накачки для R = 0.3 и 0.5 см, которые были численно получены для T = 30 кК в предположении, что $N_{\rm NF_3}(r, t) = N_0 =$ const. Видно, что возбуждение активной среды эффективно лишь внутри тонкого (менее 1 см) цилиндрического слоя, примыкающего к источнику накачки. Однако экспериментальные измерения (с помощью диафрагм, расположенных вне резонатора) удельной энергии генерации из области, прилегающей к источнику накачки (r < 1.4 см), и периферийной области, удаленной от источника накачки на расстояние r > 1.4 см, показали, что они приблизительно одинаковы и равны соответственно 3.0 и 3.4 Дж/л.

Этот результат свидетельствует о том, что в активной среде возникает волна просветления [11]. Суть явления состоит в полной диссоциации молекул NF₃ в пределах слоя единичной оптической толщины, прилегающего к источнику накачки, после чего излучение проникает в более глубокие слои вещества и производит в них аналогичное действие. В результате поглощающий слой и связанный с ним слой возбуждения «убегают» от источника накачки. При достаточно высокой интенсивности инициирующего излучения, характерной для используе-



Рис.5. Функции распределения накачки f(r).

мого в настоящей работе источника накачки, скорость волны просветления должна существенно превышать скорость расширения плазмы разряда. Действительно, типичная яркостная температура для микросекундных разрядов при электрической энергии порядка нескольких килоджоулей составляет 25–30 кК [11]. При эффективной ширине спектра поглощения NF₃ около 40 нм (см. рис.1) поток излучения I_0 в полосу поглощения достигает $8 \cdot 10^{23}$ фот./(см²·с) (T = 30 кК), а скорость волны просветления на границе с источником [11] $V = I_0/N_0 = 40$ км/с, где N_0 - концентрация молекул NF₃, соответствующая оптимальному давлению 6 мм рт.ст. Полученная скорость значительно превышает типичную скорость расширения разряда, равную 1-2 км/с.

Образование волны просветления очевидно также из следующих рассуждений. Предполагая, что основной вклад в лазерную генерацию дает переход $2 \rightarrow 1$ и пренебрегая порогом лазерной генерации, можно довольно просто оценить удельную энергию генерации ε при полном фоторазложении молекул NF₃:

$$\varepsilon \approx N_0 [\gamma_2 - (\gamma_1 + \gamma_2)/2] h v_{\rm L} = 2.8 \ {\rm Д} {\rm m}/{\rm J},$$

где γ_1 и γ_2 – доли молекул HF, образующихся в колебательных состояниях v = 1 и 2 соответственно; $hv_{\rm L}$ – энергия лазерного фотона. Различие между полученной таким образом энергией генерации є и ее экспериментальным значением может быть объяснена вкладом других переходов, а также вторичным фотолизом. В любом случае по этой оценке удельная энергия близка к полученной экспериментально. Таким образом, для объяснения экспериментально наблюдаемой удельной энергии необходимо предположить, что в активном объеме происходит полное фоторазложение молекул NF₃. Кроме того, сравнение полученной оценки с экспериментальным результатом позволяет сделать вывод о близости к единице квантового выхода лазерной генерации в расчете на один образовавшийся при фотодиссоциации атом фтора.

Еще одним свидетельством полного разложения NF₃ под действием инициирующего излучения может служить поведение лазерной генерации. На рис.6 представлены формы импульса генерации и разрядного тока, полученные в оптимальной смеси состава NF₃:H₂:Kr = 6:10:125 мм рт. ст. Видно, что длительность лазерного импульса значительно меньше длительности первого полупериода тока и, следовательно, длительности накачки (см. рис.3). Причиной этого может служить полное фоторазложение поглощающих молекул задолго до окончания накачки. Таким образом, увеличение апер-



Рис.6. Осциллограммы импульса лазерной генерации (вверху) и тока (внизу) для смеси состава NF₃:H₂:Kr = 6:10:125 мм рт. ст.

М.Ю.Артемьев, А.С.Башкин, Л.Д.Михеев и др.

туры лазера должно привести к более полному использованию энергии накачки.

Усредненную по пространству скорость волны просветления V можно оценить как отношение световой апертуры (d = 2.8 см) к длительности лазерного импульса т. При длительности т = 3.5 мкс, наблюдаемой в газовой смеси NF₃:H₂:Kr = 6:10:50 мм рт. ст., V = 8 км/с. Принимая во внимание, что $V \simeq RI_0/\rho N_0$ [11] (где ρ – радиус волны просветления), можно оценить также поток фотонов в полосу поглощения NF₃ на поверхности источника I₀ и яркостную температуру открытого разряда. Полагая, что к концу лазерного импульса R = 0.5см и $\rho = 2.5$ см, получаем $I_0 = 8 \cdot 10^{23}$ фот./(см²·с), что соответствует яркостной температуре источника накачки около 30 кК при эффективной спектральной ширине полосы поглощения NF₃, равной 40 нм (см. рис.1). В приближении монохроматического возбуждения ($\sigma_{\lambda} = \text{const}$) время жизни тр молекул NF3 во фронте волны просветления может быть оценено из соотношения $\tau_p =$ $(\sigma_{\lambda}N_0)^{-1}/V$, где $(\sigma_{\lambda}N_0)^{-1}$ – толщина поглощающего слоя; σ_{λ} и N_0 – сечение поглощения и начальная концентрация NF₃ соответственно. Для эффективного сечения поглощения $\sim 3 \cdot 10^{-18}$ см² (рис.1) оценка дает $\tau_p = 2 \cdot 10^{-6}$ с. Таким образом, благодаря возникновению волны просветления каждые 2 мкс происходит смена рабочего вещества в активной зоне лазера.

Скоростные уравнения, соответствующие кинетической модели (1)-(6), имеют следующий вид:

$$\frac{\partial[\mathbf{NF}_3]}{\partial t} = -Q(t) + k_5[\mathbf{F}][\mathbf{NF}_2][\mathbf{Kr}],\tag{7}$$

$$\frac{\partial[\mathbf{F}]}{\partial t} = \mathcal{Q}(t) - k_3[\mathbf{F}][\mathbf{H}_2] - k_5[\mathbf{F}][\mathbf{H}\mathbf{F}_2][\mathbf{K}\mathbf{r}],\tag{8}$$

$$\frac{\partial[\mathbf{H}]}{\partial t} = k_3[\mathbf{F}][\mathbf{H}_2] - k_4[\mathbf{H}][\mathbf{NF}_2],\tag{9}$$

$$\frac{\partial[NF_2]}{\partial t} = Q(t) - k_4[H][NF_2] - k_5[F][NF_2][Kr], \quad (10)$$

где Q(t) – скорость фотолиза NF₃, а квадратные скобки обозначают концентрацию. Здесь мы пренебрегли вторичным фотолизом радикалов NF₂ и реакцией (6) как очень медленной по сравнению с другими процессами.

Можно также показать, что при давлении Kr примерно 50 мм рт. ст. регенерация молекул NF₃ за счет рекомбинации радикалов NF₂ с атомарным фтором практически не влияет на процесс формирования волны просветления. Действительно, полагая в (8) [NF₂] = N_0 , нетрудно убедиться, что скорость рекомбинации значительно ниже скорости реакции накачки (3) в уравнении (8), а следовательно, и скорости фотодиссоциации Q, поскольку ∂ [F]/ $\partial t \simeq 0$ в условиях избытка H₂. Более того, можно показать, что рекомбинация NF₂ вообще не оказывает заметного влияния на кинетику активной сре-ды.

Для этого сначала оценим максимально достижимую в условиях эксперимента концентрацию атомарного фтора [F]_{max}. Из (8) следует, что

$$\begin{split} \left[\mathrm{F} \right]_{\mathrm{max}} &\simeq \mathcal{Q}_{\mathrm{max}} (k_3 [\mathrm{H}_2])^{-1} = 0.25 \sigma_\lambda I_0 N_0 (k_3 [\mathrm{H}_2])^{-1} \\ &\simeq 4 \cdot 10^{15} \ \mathrm{cm}^{-3}, \end{split}$$

где $Q_{\text{max}} = 0.25 \sigma_{\lambda} I_0 N_0 = 0.25 (\tau_p)^{-1} N_0$ – максимальная скорость фотодиссоциации во фронте волны просветления (коэффициент 0.25 обусловлен тем обстоятельством, что в режиме свободного распространения волны просветления область максимальной скорости фотодиссоциации пространственно совпадает с сечением фронта волны, в котором $I = 0.5I_0$ и $N = 0.5N_0$ [11]).

Полагая далее, что в (9) $[H] \simeq [NF_2]$, справедливость чего будет очевидна позднее, и $\partial H/\partial t = 0$, а также используя полученную выше оценку $[F]_{max}$, нетрудно убедиться, что уже при $[H]_{max} \simeq [NF_2]_{max} \simeq 5 \cdot 10^{16}$ см⁻³ скорость реакции атомов водорода с NF₂ становится сравнимой со скоростью их образования в реакции (3). Из этого следует, что в уравнении (10) скорость рекомбинации радикалов более чем на порядок ниже скорости их реакции с атомарным водородом. Учитывая это обстоятельство и сравнивая между собой уравнения (9) и (10), нетрудно удостовериться в справедливости соотношения $[H] \simeq [NF_2]$. Таким образом, действительно в условиях описываемых экспериментов рекомбинация радикалов не влияет на кинетику лазера.

Релаксация возбужденных молекул HF(v) происходит при их взаимодействии с компонентами исходной рабочей смеси (NF₃, H₂ и Kr) и продуктами фотохимических реакций (H, F, NF₂, NF, HF). Константа скорости тушения молекул HF(v) криптоном неизвестна, но, принимая во внимание черезвычайно слабое тушение молекул HF(v) аргоном [6] и низкую концентрацию криптона, использовавшегося в экспериментах, следует ожидать, что тушение криптоном пренебрежимо мало. То же можно сказать о тушении исходными молекулами NF₃ (константа скорости $3 \cdot 10^2$ с⁻¹·мм рт. ст.⁻¹ [6]), радикалами NF₂ и атомарным водородом (константы скорости тушения HF(v = 1, 2, 3) равны соответственно $1.4 \cdot 10^{-14}$, 9.7·10⁻¹⁴ и 2.5·10⁻¹³ см³·с⁻¹ для NF₂ [10] и (2-4)·10⁻¹³ см 3 ·с $^{-1}$ для Н [12]), а также атомарным фтором, концентрация которого не превышает 4·10¹⁵ см⁻³, а константа скорости тушения составляет $2.7 \cdot 10^{-11} \exp(-1350 \text{ K}/T)$ $cM^3 \cdot c^{-1}$ [6].

Единственными тушащими процессами, которые могут играть заметную роль в кинетике активной среды оптимального состава, являются тушение молекулами NF(a) и VV-обмен в HF (VT-релаксация является более медленной [12]):

$$HF(v) + NF(a) \to NF(b) + HF(v-2), \tag{11}$$

$$HF(v) + HF(v+2) \rightarrow 2HF(v+1).$$
(12)

В этом случае $k_{11v} = 8.3 \cdot 10^{-12}$ и 7.5 · 10⁻¹¹ см³·с⁻¹ для v = 2и 3 соответственно [10]; $k_{12v} = T^{-1} \{3 \exp[-0.5(300 \text{K}/T)^{1/2}] -1\} 6 \cdot 10^{-9}$ см³·с⁻¹ для v = 0 [13].

Действительно, как уже отмечалось, скорость образования NF(*a*) и HF(v = 0) в реакции (4) оказывается сравнимой со скоростью фотодиссоциации *Q* уже при концентрациях [H] \simeq [NF₂] $\simeq 5 \cdot 10^{16}$ см⁻³. Таким образом, следует ожидать, что в активной среде оптимального состава концентрации NF(*a*) и HF(v = 0) лежат в диапазоне $10^{16} - 10^{17}$ см⁻³. Легко убедиться, используя приведенные выше константы скоростей, что тушение HF(v = 2, 3) в процессах (11) и (12) может играть заметную роль. Хотя VV-обмен не меняет энергии, запасенной в колебательном резервуаре, влияние этого процесса на генерационные характеристики рассматриваемой активной среды неудивительно, поскольку, в отличие от HFлазера на цепных реакциях, в ней наряду с реакцией возбуждения (3) имеет место сравнимое по скорости заселение нулевого колебательного уровня в реакции (4).

Приведенные оценки указывают на то обстоятельство, что наблюдаемое экспериментально оптимальное значение концентрации NF₃ ($2 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$) действительно определяется тушением HF(v) в процессах (11) и (12). Более того, точные численные расчеты [14] для режима короткой (1 мкс) накачки, не вызывающей образования волны просветления, дают оптимальную концентрацию [NF₃] = $2.3 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$, что близко к экспериментально наблюдаемой в настоящей работе.

Что касается исследования ClF_5 в качестве донора атомов фтора, то полученные в настоящей работе результаты следует считать предварительными, т. к. они оказались критичными к методике приготовления смеси ClF_5-H_2 непосредственно в лазерной камере вследствие протекания в ней гомогенных и/или гетерогенных «темновых» реакций.

Оптимальное соотношение $ClF_5: H_2 = 3:20$ мм рт. ст. имело место при давлении криптона 50 мм рт. ст. В этой смеси была получена выходная лазерная энергия ~0.35 Дж при использовании конденсатора емкостью 11 мкФ, заряжаемого до 20 кВ. Форма импульса лазерного излучения была практически такой же, как и при использовании NF₃ в качестве донора атомов фтора.

Возникновение режима волны просветления в смеси ClF₅-H₂ не следует с очевидностью из спектра поглощения ClF₅, представленного на рис.1, т. к., согласно оценкам, вероятность фоторазложения вблизи поверхности источника накачки, излучающего как черное тело с температурой 30 кК, составляет всего лишь ~ $5 \cdot 10^5$ c⁻¹, что почти на порядок меньше, чем для NF₃. Кроме того, в УФ области возбуждение активной среды однородно, поскольку в этом спектральном диапазоне ($\sigma_{\lambda}N_0$)⁻¹ > d, где ($\sigma_{\lambda}N_0$)⁻¹ – глубина поглощения фотонов накачки, d – апертура лазера. Однако, если молекулы ClF₅ имеют достаточно сильный континуум поглощения в ВУФ области спектра, режим волны просветления возможен.

4. Заключение

Таким образом, в настоящей работе впервые наблюдалась лазерная генерация при оптическом инициировании излучением открытого поверхностного разряда химического HF-лазера с использованием молекулы NF₃ в качестве донора атома F и впервые в химическом HFлазере был реализован режим волны просветления. В смеси NF₃: H₂: Kr = 6:10:125 мм рт. ст. выходная лазерная энергия достигала 0.4 Дж в импульсе длительностью 3.2 мкс при удельном энергосъеме 3.5 Дж/л. Экспериментальные результаты находят качественное объяснение в рамках простой аналитической модели, анализ которой указывает на возникновение в активной среде волны просветления молекул NF₃. При этом доноры атомов фтора разрушаются в объеме, ограниченном апертурой лазера, задолго до окончания накачки. Следовательно, увеличение лазерной апертуры должно привести к значительному увеличению выходной энергии без изменения энергии накачки. Режим волны просветления в химическом HF-лазере открывает новые возможности в разработке химических лазеров, позволяя получать высокие удельные характеристики при инициировании лазера длинными (свыше 10^{-5} с) импульсами излучения. В волне просветления по существу происходит обновление активной среды в зоне лазерной генерации со сверхзвуковой скоростью (10 км/с и более), что позволяет избежать самодезактивации HF(v) в активной среде при достаточно высоком (несколько джоулей на литр) уровне удельного энергосъема. Впервые лазерная генерация в свободной волне фотодиссоциации наблюдалась при оптической накачке XeF-лазера [11], который в этом режиме излучает до 1 кДж энергии при использовании в качестве источника накачки сильной ударной волны в Kr [15].

Что касается использования молекулы ClF₅ в качестве донора атомов фтора, то в условиях инициирования излучением открытого разряда лазерная генерация при фотодиссоциации ClF₅ наблюдалась впервые. При использовании смеси ClF₅:H₂:Kr = 3:20:50 мм рт. ст. максимальная выходная энергия в лазерном импульсе длительностью 3.5 мкс достигала 0.35 Дж. Полученные результаты являются предварительными, поскольку, как выяснилось, они критичны к методике смешения ClF₅ с H₂. Более полное изучение ClF₅ в качестве донора атомов фтора с применением более совершенной технологии смешения представляет несомненный интерес, т.к. использование этого донора в химическом HF-лазере с оптической накачкой обещает относительно высокую эф-фективность лазерной генерации.

Целью настоящей работы не было создание HF-лазера с высоким техническим КПД. Однако полученные при исследовании активной среды на основе NF₃ результаты позволяют высказать некоторые соображения относительно возможного КПД лазера. В использовавшейся конструкции лазера в направлении активной среды, ограниченной апертурой лазера, распространяется лишь 1/6 часть энергии излучения источника накачки. Кроме того, сравнивая длительности лазерной генерации (3.2 мкс) и инициирующего импульса (~10 мкс), нетрудно видеть, что в результате просветления среды используется только около трети этой энергии. Из сказанного следует, что утилизация всей энергии излучения в полосе поглощения NF₃ (при осесимметричном расположении источника накачки и достаточно большой апертуре лазера) позволит получить технический КПД лазера (по отношению к энергии, запасенной в конденсаторе) около 0.4 %. При этом имеются дополнительные резервы увеличения эффективности источника накачки за счет лучшего электрического согласования последнего.

Авторы выражают признательность Т.Ю.Москалеву, А.А.Малиновской и В.И.Яловому за помощь в работе и М.Г.Войтику за полезные обсуждения.

- 1. Gregg D.W. et al. Chem. Phys. Letts, 8, 609 (1971).
- Heidner R.F.III, Helvajian H., Koffend J.B. J.Chem. Phys., 87, 1520 (1987).
- 3. Collins R.J., Husain D. J. Photochem., 2, 459 (1972-1973).
- 4. Чеботарев Н.Ф. Кандидатская диссертация (М., ФХИ им. Л.Я.Карпова, 1976).
- 5. Shirafuji T., Tachibana K. Appl. Surface Science, 79/80, 117 (1994).
- 6. Башкин А.С., Игошин В.И., Ораевский А.Н., Щеглов В.А. *Химические лазеры* (М., Наука, 1982).
- Борович Б.Л., Зуев В.С., Катулин В.А., Михеев Л.Д., Николаев Ф.А., Носач О.Ю., Розанов В.Б. Сильноточные излучающие разряды и газовые лазеры с оптической накачкой (Итоги науки и техники. Сер. Радиотехника. М., ВИНИТИ, 1978, т. 15).
- Handbook of chemical lasers (R.W.F.Gross, and J.F.Bott, eds.) (N.Y., John Wiley & Sons, 1976).
- 9. Malins R.J., Setser D.W. J. Phys. Chem., 85, 1342 (1981).
- Koffend J.B., Gardner C.E., Heidner R.F., III. J.Chem.Phys., 83, 2904 (1985).
- Zuev V.S., Mikheev L.D. Photochemical lasers (Laser Science and Technology Series) (Harwood Academic GmbH, v.11, 1991).
- 12. Mirels H., Hofland R., Whittier J.S. J. Appl. Phys., 50, 6660 (1974).
- Игошин В.И., Пичугин С.Ю. Квантовая электроника, 21, 417 (1994).
- Sabonnadiere M.P., Tcheremiskine V.I., Sentis M.L., Mikheev L.D., Delaporte Ph.C. Proc.SPIE, 3574, 622 (1998).
- Anisimov S.V., Zemskov E.M., Zuev V.S., Kazanskii V.M., Kashnikov G.N., Mikheev L.D., Nesterov R.O., Sokolov V.V., Stavrovskii D.B., Cheremiskin V.I. *Laser Phys.*, 4, 416 (1994).