

# О возможности реализации фотохимического блока на основе $\text{NH}_3$ -лазера с внутррезонаторным размещением реактора

В.М.Апатин, А.Н.Белокуров, Г.Н.Макаров, П.Мендоза, А.Н.Петин,  
С.В.Пигульский, И.Риос, Е.А.Рябов

*Доказана принципиальная возможность создания установки для проведения фотохимических реакций на основе оптически накачиваемого аммиачного лазера с размещением фотореактора внутри резонатора. Полученные значения коэффициента «включения» резонатора  $\gamma$  сопоставимы со значениями аналогичного параметра внутррезонаторных систем на основе  $\text{CO}_2$ -лазера. Определены условия достижения максимальной энергии в фокусирующем резонаторе и способы управления формой его каустики.*

**Ключевые слова:**  $\text{NH}_3$ -лазер, аммиак, резонатор, реактор, энергия.

## 1. Введение

$\text{NH}_3$ -лазер с накачкой интенсивным излучением импульсного ТЕА  $\text{CO}_2$ -лазера является одним из наиболее эффективных и мощных импульсных лазеров, генерирующих излучение в среднем ИК диапазоне (11–13 мкм). Впервые генерация на молекуле аммиака была получена в работе [1]. В последующих исследованиях были найдены новые рабочие смеси, в частности доказано решающее влияние азота как буферного газа на энергию, КПД и диапазон перестройки  $\text{NH}_3$ -лазера [2–5], разработаны эффективные оптические схемы накачки и генерации [3, 6–9], реализован импульсно-периодический режим работы как с неселективным [4], так и с селективным [10] резонатором. Характеристики созданных  $\text{NH}_3$ -лазеров стали приближаться к характеристикам газоразрядных молекулярных лазеров среднего ИК диапазона (типа  $\text{CO}_2$ -лазера): энергия в импульсе до 1.5 Дж при КПД по энергии накачки до 20 % [8].

Такие параметры, наряду с широким диапазоном перестройки частоты генерации (740–890  $\text{cm}^{-1}$  [8]) и высокой средней мощностью излучения в импульсно-периодическом режиме (десятки ватт [4, 10]), инициировали исследования по ряду практических применений  $\text{NH}_3$ -лазера, в частности в области лазерного разделения изотопов (ЛРИ). Так, в [11] наблюдалась изотопически-селективная ИК многофотонная диссоциация (ИК МФД) молекулы  $\text{CCl}_4$  под действием излучения  $\text{NH}_3$ -лазера на частоте 780.5  $\text{cm}^{-1}$ , близкой к частоте моды  $\nu_3$  молекулы  $\text{CCl}_4$  (775  $\text{cm}^{-1}$ ). Выход диссоциации был в этом случае значительно выше, чем в случае диссоциации  $\text{CCl}_4$  импульсом  $\text{CO}_2$ -лазера [12] при воздействии на комбина-

ционную полосу  $\nu_1 + \nu_2 + \nu_4$ .  $\text{NH}_3$ -лазер использовался также в экспериментах по ЛРИ селена при диссоциации молекулы  $\text{SeF}_6$  [13]. Возможность разделения изотопов водорода (H/D/T) с помощью излучения  $\text{NH}_3$ -лазера была продемонстрирована для молекул  $\text{CHCl}_3$  [14, 15],  $\text{CHF}_3$  [16],  $\text{CF}_3\text{CHBrF}$  [17]. В работе [15] достигнута селективность МФД  $\alpha(\text{D/T}) > 15000$ .

Одной из основных проблем, возникающих при практической реализации любого процесса ЛРИ, является эффективное использование лазерного излучения. В случае ЛРИ углерода на основе ИК МФД молекулы  $\text{CF}_2\text{HCl}$  излучением  $\text{CO}_2$ -лазера эта проблема была решена путем размещения фотохимического реактора внутри резонатора лазера [18]. Внутррезонаторная схема облучения позволяет, во-первых, формировать протяженные каустики с высокой плотностью энергии лазерного излучения (десять и более Дж/см<sup>2</sup>) и, во-вторых, обеспечить высокие коэффициенты использования лазерного излучения при разумной длине области взаимодействия ( $\sim 1$  м). В работах [18–20] была доказана большая эффективность процесса ЛРИ углерода при таком внутррезонаторном размещении фотохимического реактора, и поэтому данная концепция была положена в основу промышленной технологии ЛРИ углерода [21].

Целью настоящей работы является выяснение возможности использования принципов внутррезонаторной схемы облучения для  $\text{NH}_3$ -лазера, а также определение оптимальных условий ее реализации.

## 2. Экспериментальная установка

Для накачки  $\text{NH}_3$ -лазера чаще всего используют линии 9R16 либо 9R30  $\text{CO}_2$ -лазера, частоты которых близки к частотам переходов aR(6, k) и sR(5, k) молекул аммиака соответственно [8]. Как показано в работах [2–5], во втором случае реализуется более высокий КПД  $\text{NH}_3$ -лазера и, кроме того, возможна перестройка частоты его излучения в широком диапазоне. Поэтому эксперименты, проведенные в настоящей работе, выполнены при накачке аммиака на частоте линии 9R30 (длина волны  $\lambda = 9.22$  мкм). В качестве источника накачки использовался импульсный ТЕА  $\text{CO}_2$ -лазер, работав-

В.М.Апатин, Г.Н.Макаров, Е.А.Рябов. Институт спектроскопии РАН, Россия, 142190 Троицк, Московская обл.; e-mail: ryabov@isan.troitsk.ru

А.Н.Белокуров, Р.Мендоза, И.Риос. INVAPS.E. Company, Laser Optics Technology Lab. Moreno 1089, 8400, San Carlos de Bariloche, Rio Negro, Argentina; e-mail: abelokur@invap.com.ar

А.Н.Петин, С.В.Пигульский. ФГУП «ГНЦ РФ – Троицкий институт инновационных и термоядерных исследований», Россия, 142190 Троицк, Московская обл.; e-mail: pigulsky@triniti.ru

Поступила в редакцию 17 ноября 2005 г.

ший на смеси CO<sub>2</sub>:N<sub>2</sub>:He = 1:1:4 при общем давлении до 650 Тор и настроенный на частоту линии 9R30. Импульс накачки имел стандартную форму – пик длительностью ~90 нс по полувысоте с хвостом длительностью ~1.6 мкс. Полная энергия генерации составляла 2.3–2.6 Дж, причем в хвосте содержалось не более 50 % полной энергии импульса. Кювета NH<sub>3</sub>-лазера представляла собой трубу из нержавеющей стали длиной 180 или 100 см. Характеристики излучения NH<sub>3</sub>-лазера изучались на частотах 828 см<sup>-1</sup> ( $\lambda = 12.08$  мкм) и 816 см<sup>-1</sup> ( $\lambda = 12.25$  мкм). Энергия лазерных импульсов измерялась с помощью малоинерционных калориметров, временные характеристики изучались с помощью фотоприемника с полосой 50 МГц и осциллографа Tektronix TDS-200.

На первом этапе работы были экспериментально исследованы различные возможные схемы накачки NH<sub>3</sub>-лазера, в том числе схема с частично совмещенными резонаторами CO<sub>2</sub>- и NH<sub>3</sub>-лазеров, схема с размещением кюветы с NH<sub>3</sub> в резонаторе CO<sub>2</sub>-лазера и схема с отдельными резонаторами.

При работе по схеме с частично совмещенными резонаторами [3], главное достоинство которой – максимальное использование энергии накачки, эффективность конверсии излучения накачки в область 12.08 мкм была довольно низкой. Последнее обстоятельство связано, по видимому, с малой добротностью резонатора NH<sub>3</sub>-лазера, которая определяется в данном случае наличием в резонаторе дифракционной решетки с параметрами, позволяющими получать максимальную энергию накачки. Кроме того, излучение NH<sub>3</sub>-лазера проходит через активную среду CO<sub>2</sub>-лазера, что может приводить к дополнительным потерям [8]. Оптимизация данной схемы связана со значительными техническими трудностями, поэтому мы сочли ее малопрспективной.

По аналогии с результатами работы [18] можно было предположить, что размещение кюветы с аммиаком внутри резонатора CO<sub>2</sub>-лазера в схеме с внутррезонаторной накачкой NH<sub>3</sub>-лазера повысит энергию накачки и соответственно энергию генерации.

В этом случае резонатор CO<sub>2</sub>-лазера был образован сферическим зеркалом и дифракционной решеткой (100 штр./мм, коэффициенты отражения в 1-й порядок дифракции 65 %, отражение в 0-й порядок – 24 %), установленной в режиме автоколлимации для выбранной частоты накачки (линия 9R30 CO<sub>2</sub>-лазера). Внутри резонатора CO<sub>2</sub>-лазера располагалась кювета NH<sub>3</sub>-лазера.

Энергия излучения накачки в резонаторе в отсутствие аммиака в кювете («пустой» резонатор) составляла около 5.5 Дж. Частота излучения накачки определялась с помощью заполненного аммиаком оптико-акустического приемника, установленного на пути излучения, выходящего в нулевом порядке решетки. Уровень сигнала с приемника на частоте линии 9R30 более чем на два порядка превышал уровень сигнала на соседних линиях. Было обнаружено, что после заполнения кюветы NH<sub>3</sub>-лазера аммиачно-азотной смесью при давлении 5–10 Тор и выше сигнал с приемника падал в 50 раз и более. Энергия внутри резонатора при этом уменьшалась всего в 2–3 раза (в зависимости от состава и давления смеси). Мы полагаем, что это явление связано с изменением спектрального состава импульса накачки при наличии сильнопоглощающего газа в резонаторе, т.е. моды, находящиеся в хорошем резонансе с линиями поглощения молекул аммиака, подавляются и, следовательно,

эффективной накачки аммиака не происходит. Максимальная энергия генерации (2.5 мДж в импульсе) была получена на смеси NH<sub>3</sub>:N<sub>2</sub> = 1:150 при суммарном давлении 45 Тор.

Повышение энергии импульса CO<sub>2</sub>-лазера в пустом резонаторе примерно до 8.8 Дж положительного эффекта не дало из-за возникновения сильной самофокусировки излучения накачки в нелинейно поглощающем газе при напуске аммиачно-азотной смеси в кювету NH<sub>3</sub>-лазера.

Полученные результаты позволяют сделать вывод о малой перспективности схем с размещением кюветы с NH<sub>3</sub> внутри резонатора CO<sub>2</sub>-лазера, что связано, во-первых, со сложностью одновременной оптимизации условий работы двух лазерных систем (CO<sub>2</sub>- и NH<sub>3</sub>-), а во-вторых – с нелинейными явлениями внутри общего резонатора (самофокусировка).

*Схема с отдельными резонаторами.* Вообще говоря, возможны различные варианты реализации схемы с отдельными резонаторами NH<sub>3</sub>- и CO<sub>2</sub>-лазеров. После проведенного анализа мы остановились на варианте, близком к предложенному в [6], схема которого приведена на рис.1. В этой схеме излучение накачки, выходящее через 0-й порядок дифракционной решетки 2 (100 штр./мм, отражение падающего излучения в 1-й и 0-й порядки дифракции примерно одинаково), падает на делительную дифракционную решетку 3 (75 штр./мм, угол блеска  $\alpha = 37^\circ 30'$ , коэффициент отражения в 1-й порядок для  $\lambda = 16$  мкм 86 %) по направлению, близкому к нормали к ее поверхности. Через 1-й порядок дифракции этой решетки (для  $\lambda = 9.22$  мкм) излучение накачки направляется в кювету с аммиаком. Резонатор NH<sub>3</sub>-лазера образован дифракционной решеткой 4 (100 штр./мм, коэффициент отражения падающего излучения в 1-й порядок около 90 %) и зеркалом 6, связанными между собой через 0-й порядок решетки 3. Зеркало 5 «запирает» излучение накачки, не поглотившееся в кювете. Излучение NH<sub>3</sub>-лазера выводится через 1-й и (-1-й) порядки решетки 3 для  $\lambda = 12.08$  мкм при падении со стороны решетки 4 (канал 1) и зеркала 6 (канал 2) соответственно. Зеркало 9, «запирающее» канал 2, позволяет сконцентрировать все излучение с  $\lambda = 12.08$  мкм в канале 1 и, кроме того, повышает добротность резонатора NH<sub>3</sub>-лазера. Все зеркала имеют радиус кривизны  $R = -10$  м.

Поскольку именно эта схема использовалась в дальнейших экспериментах, на рис.1 изображен также гипотетический фотореактор, который вместе с фокусирующими оптическими элементами – зеркалами 7 и 8 – располагается в канале 1.

Более привлекательным в плане максимального использования излучения накачки выглядит такой вариант схемы, приведенной на рис.1, в котором излучение накачки падает на решетку 3 не под прямым углом, а под углом, близким к углу автоколлимации для  $\lambda = 9.22$  мкм. Данная схема позволяет повысить эффективность ввода накачки по сравнению со схемой на рис.1 за счет увеличения отражения излучения накачки в 1-й порядок (см., напр., [22]).

Для сравнения потенциальных возможностей этих схем были измерены коэффициенты отражения излучения с  $\lambda = 9.22$  мкм в 1-й и -1-й порядки дифракции решетки 3 при различных углах падения на нее излучения накачки. Результаты приведены на рис.2. В целом характер зависимостей на рис.2 соответствует ожидае-

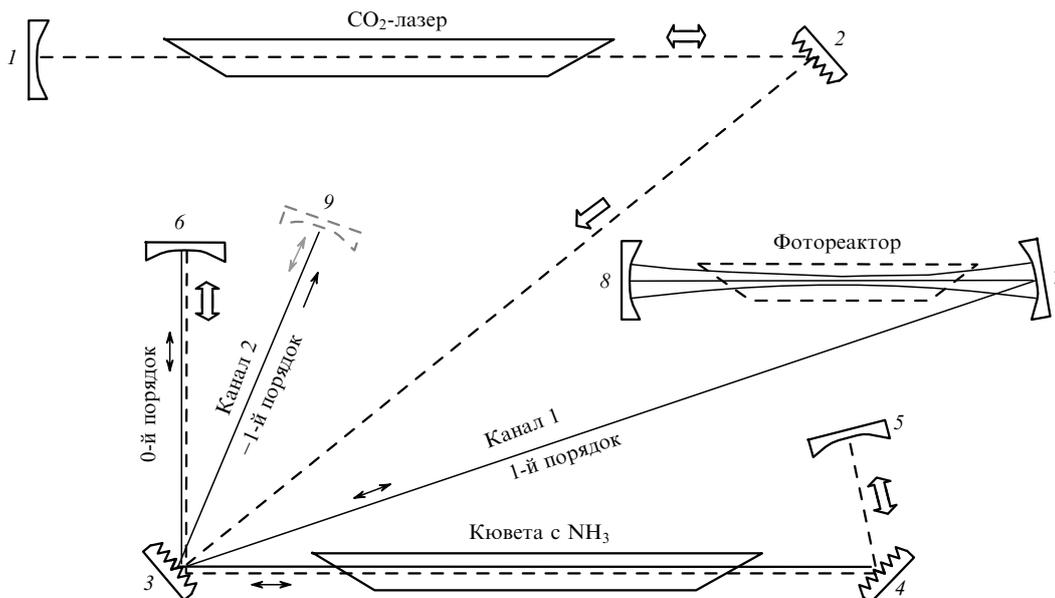


Рис.1. Схема фотохимического блока с отдельными резонаторами CO<sub>2</sub>- и NH<sub>3</sub>-лазеров и нормальным падением излучения накачки на делительную решетку: 1, 5–9 – зеркала; 2– 4 – дифракционные решетки; широкая и узкая стрелки обозначают направление распространения излучения CO<sub>2</sub>- и NH<sub>3</sub>-лазеров.

тому [22], однако видно нарушение монотонности верхней кривой для угла 0°, который соответствует нормальному падению излучения на решетку. По-видимому, в этом случае часть импульса излучения, зеркально отразившаяся от решетки 3, попадает в активную среду CO<sub>2</sub>-лазера, усиливается и возвращается обратно, что приводит к заметному повышению энергии, падающей на решетку 3 и направленной в 1-й порядок. Кроме того, в случае схемы, приведенной на рис.1, вклад в 1-й порядок дает как непосредственно падающее на решетку излучение, так и излучение, отраженное из –1-го порядка зеркалом 6 (в 1-й порядок дифракции попадало около 50 % излучения, возвращенного из –1-го порядка).

Таким образом, различие в энергиях, направляемых в кювету с аммиаком, для случаев нормального падения излучения на решетку (с учетом описанного эффекта дополнительного усиления) и падения под углом, близким к углу автоколлимации, не слишком велико. С другой

стороны, реализация последней схемы связана с определенными трудностями в размещении ее элементов (кювета с NH<sub>3</sub>, фотореактор, зеркала). Кроме того, она несколько сложнее в плане юстировки.

Исходя из вышеизложенного, для дальнейших экспериментов была выбрана схема с нормальным падением излучения накачки на делительную решетку 3 (рис.1). В этой схеме энергия накачки на входе в кювету с аммиаком составляла 1.6–1.7 Дж. При площади пятна излучения на входе в кювету  $S \sim 1.5 \text{ см}^2$  плотность энергии накачки была равна  $\sim 1.1 \text{ Дж/см}^2$ .

### 3. Результаты экспериментов и их обсуждение

Напомним, что основная цель работы заключалась в выяснении принципиальной возможности реализации схемы размещения фотореактора внутри резонатора NH<sub>3</sub>-лазера, а также в определении оптимальных условий ее работы.

Для нахождения оптимальных параметров активной среды NH<sub>3</sub>-лазера были исследованы зависимости энергии генерации от давления смеси NH<sub>3</sub> – N<sub>2</sub> при различных соотношениях концентраций компонентов (рис.3). Эти зависимости в целом соответствуют результатам, полученным ранее (см., напр., [8, 23]). Максимальная энергия излучения, выходящего через канал 1 (180 мДж в импульсе), была достигнута на частоте  $816 \text{ см}^{-1}$  для смеси NH<sub>3</sub> : N<sub>2</sub> = 1 : 70 при общем давлении около 80 Тор и длине кюветы NH<sub>3</sub>-лазера 100 см. В экспериментах с фокусирующим резонатором (см. ниже) энергия излучения, выходящего через канал 1, поддерживалась на уровне 120–130 мДж.

Известно, что механизм генерации NH<sub>3</sub>-лазера весьма сложен. В формирование импульса излучения может, во-первых, вносить вклад вынужденное комбинационное рассеяние излучения CO<sub>2</sub>-лазера, во-вторых – генерация, связанная с инверсией населенностей в трехуровневой системе [23, 24]. При этом активная среда имеет большой

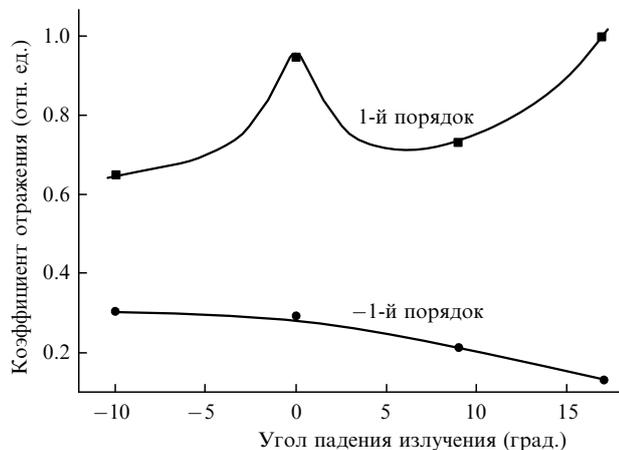


Рис.2. Отражательные характеристики дифракционной решетки при разных углах падения излучения накачки (0° – нормальное падение, угол автоколлимации равен  $\sim 20^\circ$ ).

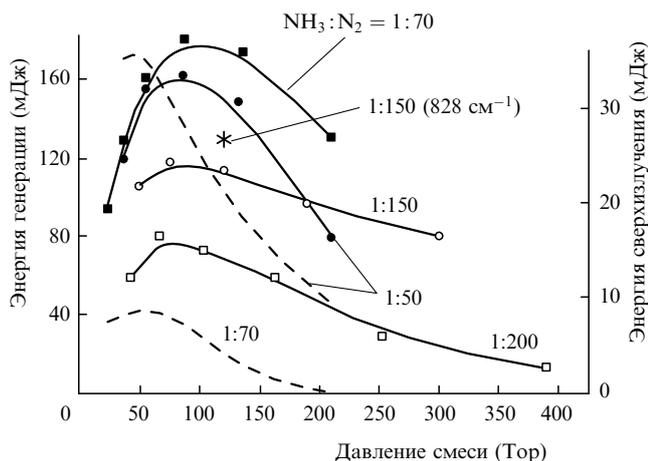


Рис.3. Зависимости энергии генерации NH<sub>3</sub>-лазера в канале 1 (см. рис.1) (сплошные кривые) и энергии сверхизлучения (штриховые кривые) от давления смеси NH<sub>3</sub> – N<sub>2</sub>; длина кюветы с NH<sub>3</sub>  $l_q = 100$  см, частота генерации 816 см<sup>-1</sup>.

коэффициент усиления, что приводит в ряде случаев к появлению стимулированного излучения (в дальнейшем – сверхизлучение) даже в отсутствие одного из зеркал резонатора. Было замечено, что вклад сверхизлучения растет с увеличением парциального содержания аммиака и снижением давления смеси (штриховые кривые на рис.3), причем для частоты генерации 828 см<sup>-1</sup> (12.08 мкм) вклад сверхизлучения максимален. Этот вклад также больше для длинной кюветы, чем для короткой. Для короткой кюветы и смесей NH<sub>3</sub> : N<sub>2</sub> = 1 : (150 и более) при рабочих давлениях 70–80 Тор и выше сверхизлучения практически не наблюдалось. Как будет видно из дальнейшего, сверхизлучение оказывает отрицательное влияние на параметры фотохимического блока в целом.

Фокусирующий оптический резонатор, в котором размещался гипотетический фотореактор (см. рис.1), устанавливался в канале 1 генерации NH<sub>3</sub>-лазера и состоял из металлических зеркал 7 и 8 с фокусными расстояниями  $f_1$  и  $f_2$  соответственно. Параметры резонатора рассчитывались с помощью модели, основанной на расчете собственных мод резонатора в приближении гауссовых пучков (см., напр., [25]). В экспериментах и расчетах варьировались фокусные расстояния  $f_1$  и  $f_2$ , общая длина резонатора (решетка 4 – зеркало 8)  $L_{res}$ , расстояние  $l_1$  между решеткой 3 и зеркалом 7, а также расстояние  $l_2$  между зеркалами 7 и 8.

Энергия поля внутри фокусирующего резонатора измерялась с помощью двумерного сканирования предварительно откалиброванного микрозонда (характерный размер 100 мкм) по специально разработанной методике.

Эффект «включения» дополнительного фокусирующего резонатора регистрировался как в результате непосредственного измерения энергии в резонаторе с помощью микрозонда, так и по излучению, выходящему через канал 2 (см. рис.1).

В первом случае с помощью калориметра вначале измерялась энергия  $E$  излучения, выходящего через канал 1. Ясно, что тогда, когда излучение просто возвращается зеркалом 8, без «включения» дополнительного резонатора, энергия, циркулирующая в канале 1, должна составить  $2E$ . Если принять теперь за  $E_{res}$  энергию, измеренную микрозондом в пространстве между зеркалами 7 и 8 при «включенном» дополнительном резонаторе, то ко-

эффициент «включения» резонатора  $\gamma$  можно определить как  $\gamma = E_{res}/2E$ . Таким образом, параметр  $\gamma$  количественно характеризует эффект увеличения энергии в резонаторе NH<sub>3</sub>-лазера по сравнению с простым однократным обращением излучения.

Во втором случае вычислялся коэффициент  $\gamma_{las} = E_{6,8}/(E_6 + E_8)$ , где  $E_6$  и  $E_8$  – энергии излучения, выходящего через канал 2 после отражения от зеркала 6 или от зеркала 8 (см. рис.1),  $E_{6,8}$  – энергия в канале 2 при одновременно включенных зеркалах 6 и 8. Зависимости коэффициентов  $\gamma$  и  $\gamma_{las}$  от условий эксперимента носят схожий характер, однако получать качественные зависимости с использованием  $\gamma_{las}$  было более удобно, так как процедура его определения значительно менее трудоемка. Параметры исследованных фокусирующих резонаторов приведены в табл.1.

Табл.1. Параметры фокусирующих резонаторов.

Вариант резонатора	$f_1$ (см)	$f_2$ (см)	$L_{res}$ (см)
1	80	25	442
1a	80	25	368
2	50	35	489
2a	50	35	402
3	35	25	336

На рис.4 приведены рассчитанные по описанной выше модели площади поперечного сечения  $S$  каустик для различных вариантов фокусирующих резонаторов, а также экспериментальные точки, полученные с помощью микрозонда. Видно, что с точностью до погрешности регистрирующей аппаратуры модель дает вполне удовлетворительное согласие с экспериментом. Во всех случаях наблюдался многомодовый режим генерации NH<sub>3</sub>-лазера, поперечный индекс моды  $n$  мог меняться от двух до шести. Здесь же приведены рассчитанные по данной модели эффективные объемы  $V$  каустик. За эффективный объем принимался удвоенный объем усеченного конуса с отношением радиусов основания и вершины  $R/r = \sqrt{2}$ . Как и следовало ожидать, объем каустики уменьшается при переходе к резонатору с короткофокусными элементами. Наоборот, с увеличением номера моды  $n$  резонатора эффективный объем каустики растет. Весьма существенно то, что, согласно расчету для заданного  $n$ , объем каустики заметно возрастает при уменьшении общей длины резонатора (рис.4,з).

Для всех вариантов резонатора (см. также соответствующую зависимость на рис.6) наблюдалось уменьшение  $S$  на некотором фиксированном расстоянии от перетяжки с ростом давления смеси NH<sub>3</sub> – N<sub>2</sub> в кювете NH<sub>3</sub>-лазера. По-видимому, наблюдаемый эффект связан с изменением модового состава излучения при изменении условий накачки и генерации с давлением рабочей смеси. Этот вопрос требует проведения дополнительных исследований.

Для определения путей достижения максимальных значений резонаторного эффекта  $\gamma$  были получены зависимости  $\gamma$  и  $\gamma_{las}$  в широком диапазоне условий эксперимента. На рис.5 представлены зависимости коэффициента  $\gamma_{las}$  от давления рабочих смесей разного состава в кювете с NH<sub>3</sub>. Видно, что  $\gamma_{las}$  растет как с увеличением общего давления смеси, так и с уменьшением парциальной концентрации аммиака в кювете. Аналогично выгля-

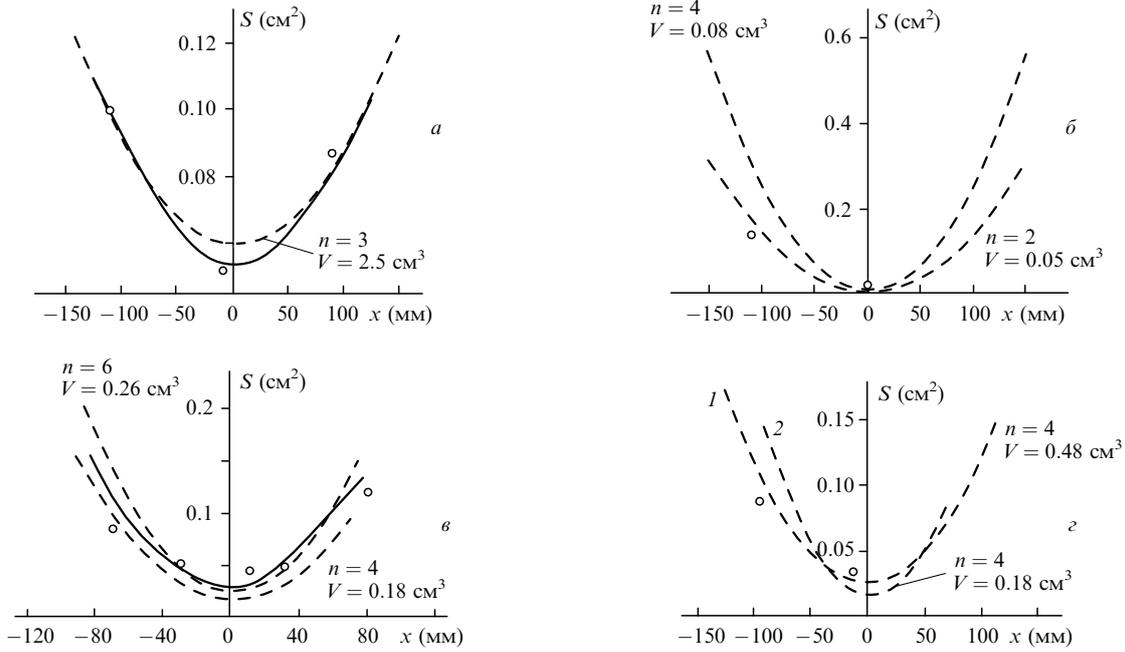


Рис.4. Зависимости площадей поперечного сечения  $S$  каустики фокусирующего резонатора от расстояний  $x$  от перетяжки для разных вариантов резонатора: длина кюветы с  $\text{NH}_3$   $l_q = 180$  см,  $f_1 = 80$  см,  $f_2 = 25$  см,  $L_{\text{res}} = 442$  см (а);  $l_q = 100$  см,  $f_1 = 50$  см,  $f_2 = 35$  см,  $L_{\text{res}} = 489$  см (б);  $l_q = 100$  см,  $f_1 = 35$  см,  $f_2 = 25$  см,  $L_{\text{res}} = 489$  см (в) и  $l_q = 100$  см,  $f_1 = 50$  см,  $f_2 = 35$  см,  $L_{\text{res}} = 402$  см (точки и кривая 1) и 489 см (кривая 2) (г). Точки – эксперимент, сплошные кривые – аппроксимация экспериментальных точек, штриховые кривые – расчет по принятой модели для разных значений  $n$ ; эффективный объем каустики  $V$  рассчитан для данного  $n$ .

дят и зависимости для коэффициента  $\gamma$  (см. рис.6 и 7). Такое поведение  $\gamma$  и  $\gamma_{\text{las}}$  мы связываем с конкуренцией двух механизмов развития генерации в  $\text{NH}_3$ -лазере (см. выше). По-видимому, наличие в импульсе генерации компоненты, обусловленной сверхизлучением, оказывает существенное влияние на величину  $\gamma$ , уменьшая ее. Напомним, что вклад сверхизлучения в общую энергию импульса  $\text{NH}_3$ -лазера растет при использовании богатых аммиаком рабочих смесей, а также при снижении давления газа в кювете с  $\text{NH}_3$  (см. рис.3).

Было также изучено влияние общей длины фокусирующего резонатора  $L_{\text{res}}$  на характеристики фотохимического блока. Сравнивались варианты резонатора 2 ( $L_{\text{res}} = 489$  см) и 2а ( $L_{\text{res}} = 402$  см) (см. табл.1). Значение  $\gamma$  для варианта 2 во всех случаях не превышало 1.4. Ре-

зультаты для варианта 2а представлены на рис.7. Если сравнить рис.6 и 7, то можно увидеть, что повышение добротности фокусирующего резонатора вследствие уменьшения его длины  $L_{\text{res}}$  приводит к существенному росту  $\gamma$  (вплоть до  $\gamma = 2.7$ ) и, соответственно,  $E_{\text{res}}$ . В свою очередь, из сравнения рис.3 и 7 следует, что максимальные значения  $E_{\text{res}}$  достигаются при больших давлениях рабочей смеси, чем максимальные значения  $E$ , что является следствием разного характера зависимостей  $E(p)$  и  $\gamma(p)$ . Сравнение рис.6 и 7 еще раз показывает, что определенное уменьшение длины кюветы с  $\text{NH}_3$  должно приводить к повышению эффективности работы фотохи-

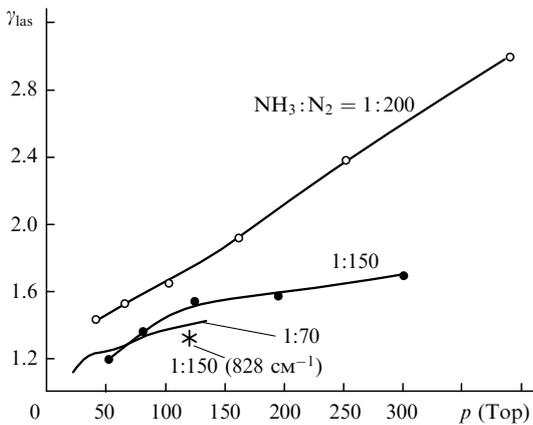


Рис.5. Зависимости коэффициента  $\gamma_{\text{las}}$  от давления  $p$  смеси  $\text{NH}_3 - \text{N}_2$  при  $l_q = 100$  см,  $f_1 = 80$  см,  $f_2 = 25$  см,  $L_{\text{res}} = 368$  см и частоте генерации  $816 \text{ см}^{-1}$ .

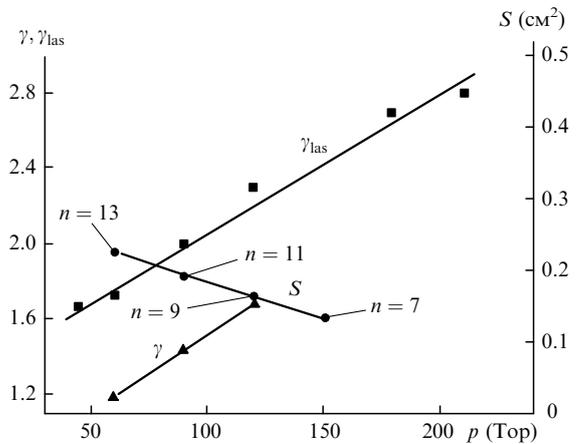


Рис.6. Зависимости коэффициентов  $\gamma$  и  $\gamma_{\text{las}}$  и площади поперечного сечения  $S$  перетяжки каустики от давления  $p$  смеси  $\text{NH}_3 : \text{N}_2 = 1 : 250$  при  $l_q = 180$  см,  $L_{\text{res}} = 442$  см,  $f_1 = 80$  см и  $f_2 = 25$  см. Для точек зависимости  $S(p)$  приведены значения вычисленного по принятой модели поперечного индекса моды  $n$  резонатора, обеспечивающие наилучшее согласие расчета и эксперимента.

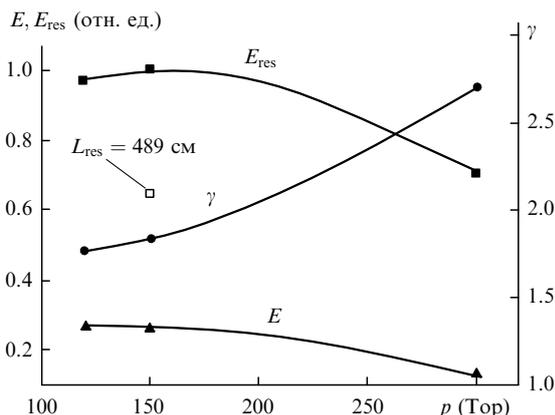


Рис.7. Зависимости энергии  $E$  генерации в канале 1, энергии  $E_{res}$  внутри фокусирующего резонатора и резонаторного эффекта  $\gamma$  от давления смеси  $NH_3:N_2 = 1:150$  при  $l_q = 100$  см,  $L_{res} = 402$  см,  $f_1 = 50$  см и  $f_2 = 35$  см. Светлый квадрат –  $E_{res}$  для резонатора длиной 489 см.

мического блока в целом – в данном случае за счет более высоких значений  $\gamma$ . По той же причине оптимальными являются рабочие смеси с соотношением компонентов  $NH_3:N_2$ , близким к 1:150, а не 1:70, как на рис.3.

Некоторые результаты, полученные в данном разделе, сведены в табл.2. Приведены условия, при которых достигнуты максимальные значения плотности энергии  $\Phi$  в перетяжке резонатора фотореактора для генерации на частоте  $816\text{ см}^{-1}$ . Для частоты  $828\text{ см}^{-1}$  результаты различаются несущественно. Параметр  $V$  в табл.2 – эффективный объем каустики, вычисленный по модели расчета для  $n = 4$ . Максимальные значения  $E_{res} = 440$  мДж и  $\Phi = 19$  Дж/см<sup>2</sup> получены для варианта 3 резонатора с наибольшим сжатием пучка ( $f_1 = 35$  см,  $f_2 = 25$  см,  $L_{res} = 336$  см). Результаты получены на смеси  $NH_3:N_2 = 1:150$  при общем давлении 120 Тор для кюветы длиной 100 см.

Табл.2. Экспериментальные и расчетный ( $V$ ) результаты.

Вариант резонатора	$\Phi$ (Дж/см <sup>2</sup> )	$S$ (см <sup>2</sup> )	$\gamma$	$E_{res}$ (мДж)	$V$ (см <sup>3</sup> )
1		0.05			3.2
1a	6.7	0.06	1.2	400	4.2
2	6.0	0.04	1.2	240	0.18
2a	8.3	0.04	1.8	330	0.48
3	19	0.02	1.7	440	0.08

Примечание. Использовалась смесь  $NH_3:N_2 = 1:150$  при общем давлении 120 Тор, длина кюветы  $l_q = 100$  см, частота генерации  $816\text{ см}^{-1}$ .

Таким образом, максимальное значение  $\gamma$ , реализованное в данной работе, составило 2.7. Как следует из эксперимента, одним из главных параметров, определяющих значение  $\gamma$  при заданной величине усиления в среде, является добротность резонатора  $NH_3$ -лазера. Представляет интерес сравнить значения  $\gamma$  для  $NH_3$ -лазера с аналогичным параметром для  $CO_2$ -лазера, определив последний как  $\gamma_{CO_2} = E_{res}/2E$  ( $E$  – энергия генерации лазера в стандартном режиме (рис.1),  $E_{res}$  – энергия внутри резонатора при работе по схеме из [18]). В нашем эксперименте при замене выводящей решетки 2 (рис.1) в резонаторе  $CO_2$ -лазера «глухой» решеткой на линии 9R30 было получено  $\gamma_{CO_2} = 1.8 - 2.1$ . В принципе на других

линиях  $\gamma_{CO_2}$  может достигать и больших значений. Тем не менее очевидно, что значения  $\gamma$ , полученные для  $NH_3$ -лазера, вполне сопоставимы со значениями этого параметра для  $CO_2$ -лазера. Отметим, что имеются возможности дальнейшего повышения  $\gamma$ . Так, для схемы рис.1 существенное влияние на работу всей системы, в том числе на добротность резонатора  $NH_3$ -лазера, оказывают параметры делительной дифракционной решетки 3. Правильный их выбор – это отдельная задача, в нашем эксперименте они были не оптимальными. Мы полагаем, что оптимизация делительной решетки позволит заметно повысить значения параметра  $\gamma$ .

#### 4. Заключение

Сформулируем основные выводы, следующие из результатов настоящей работы.

- Принципиально доказана возможность реализации фотохимического блока на основе  $NH_3$ -лазера с внутрирезонаторным размещением фотореактора.

- Среди изученных схем оптимальной оказалась схема фотохимического блока с близким к нормальному падением излучения накачки на делительную дифракционную решетку.

- Условия получения максимальной энергии излучения внутри резонатора фотореактора отличны от условий достижения максимальной энергии генерации  $NH_3$ -лазера. Наличие в импульсе генерации компоненты, обусловленной сверхизлучением, снижает величину коэффициента «включения» дополнительного резонатора  $\gamma$ .

- Максимальное значение  $\gamma$ , реализованное в работе, составило 2.7, что сопоставимо со значениями аналогичного параметра внутрирезонаторной системы на основе  $CO_2$ -лазера. Имеются возможности дальнейшего увеличения  $\gamma$  за счет оптимального выбора параметров резонатора.

Отметим также, что технически вполне возможно создание  $NH_3$ -лазера с энергией генерации 1 Дж и более. Тогда энергия  $E_{res}$  внутри резонатора, где располагается фотореактор, должна составить 4–5 Дж, и, например, плотность энергии  $\Phi \sim 20$  Дж/см<sup>2</sup> может быть создана в каустике с эффективным объемом  $V$  в десятки кубических сантиметров. Если учесть еще, что импульсно-периодический режим работы  $NH_3$ -лазера реализуется без особых проблем [4, 10], то такой лазер вполне может быть использован в крупномасштабных фотохимических установках.

Авторы выражают искреннюю признательность В.Б.Лаптеву и В.Н.Лохману за полезные обсуждения.

Работа выполнена при частичной поддержке РФФИ (грант № 05-08-18005-а).

1. Chang T.Y., McGee J.P. *Appl. Phys. Lett.*, **28**, 526 (1976).
2. Fry S.M. *Opt. Commun.*, **19**, 320 (1976).
3. Васильев Б.И., Грасюк А.З., Дядькин А.П. *Квантовая электроника*, **4**, 1085 (1977).
4. Vaganov V.Yu., Kazakov S.A., Pismenny V.D. et al. *Appl. Phys.*, **17**, 317 (1978).
5. Yambayashi N., Yoshida T., Miyazaki K., Fujisawa K. *Opt. Commun.*, **30**, 245 (1979).
6. Васильев Б.И., Дядькин А.П., Фурзиков Н.П., Ястребков А.Б. *Письма в ЖТФ*, **5**, 439 (1979).
7. Васильев Б.И., Грасюк А.З., Ефимовский С.В., Смирнов В.Г., Ястребков А.Б. *Квантовая электроника*, **6**, 648 (1979).
8. Васильев Б.И., Грасюк А.З., Дядькин А.П., Суханов А.Н., Ястребков А.Б. *Квантовая электроника*, **7**, 116 (1980).

9. Tashiro H., Suzuki K., Toyoda K., Namba S. *Appl. Phys.*, **21**, 237 (1980).
10. Баранов В.Ю., Дядькин А.П., Казаков С.А., Пигульский С.В., Стародубцев А.И. *Квантовая электроника*, **12**, 1968 (1985).
11. Ambartzumian R.V., Furzikov N.P., Letokhov V.S., Dyad'kin A.P., Grasyuk A.Z., Vasil'ev B.I. *Appl. Phys.*, **15**, 27 (1978).
12. Ambartzumian R.V., Gorokhov Yu.A., Makarov G.N., Puzetzyk A.A. *Phys. Lett. A*, **56**, 183 (1976).
13. Tise J.J., Wittig C.K. *J. Chem. Phys.*, **69**, 4756 (1978).
14. Magnotta F., Herman I.P., Aldridge F.I. *Chem. Phys. Lett.*, **92**, 600 (1982).
15. Magnotta F., Herman I.P. *J. Chem. Phys.*, **81**, 2363 (1984).
16. Magnotta F., Herman I.P. *Appl. Phys. B*, **36**, 207 (1985).
17. Takeuchi K., Kurihara O., Makide Y., Midorikawa K., Tashiro H. *Appl. Phys. B*, **37**, 67 (1985).
18. Лохман В.Н., Макаров Г.Н., Рябов Е.А., Сотников М.В. *Квантовая электроника*, **23**, 81 (1996).
19. Baranov V.Yu., Dyad'kin A.P., Malyuta D.D., Kuzmenko V.A., Pigulsky S.V., Mezhevov V.S., Letokhov V.S., Laptev V.B., Ryabov E.A., Yarovoi I.V., Zarin V.B., Podoryashy A.S. *Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng.*, **4165**, 314 (2000).
20. Baranov V.Yu., Dyad'kin A.P., Malyuta D.D., Pigulsky S.V., Laptev V.B., Letokhov V.S., Ryabov E.A. *Techn. Dig. Conf. on Lasers, Applications and Technologies (LAT-2002)* (Moscow, Russia, 2002, p. 291).
21. Баранов В.Ю., Дядькин А.П., Летохов В.С., Рябов Е.А. В кн.: *Изотопы: свойства, получение, применение. Т. 1* (М.: Физматлит, 2005, с. 460).
22. Малышев В. И. *Введение в экспериментальную спектроскопию* (М.: Наука, 1979).
23. Васильев Б.И., Грасюк А.З., Дядькин А.П. и др. *Труды ФИАН*, **136**, 1 (1982).
24. Баранов В.Ю., Дядькин А.П., Пигульский С.В., Пономарев А.П., Шпилюн О.В. *Препринт ИАЭ № 5401/7* (М., 1991).
25. Ораевский А.Н. *Труды ФИАН*, **187**, 3 (1988).

## ПОПРАВКА

**В.Д.Овсянников, В.Г.Пальчиков, Х.Катори, М.Такамото.** Поляризационные и дисперсионные свойства световых сдвигов в высокостабильных оптических стандартах частоты («Квантовая электроника», 2006, т. 36, № 1, с. 3–19).

В статье по вине авторов допущены ошибки в табл.3 на с. 6. Ниже приведена исправленная табл.3.

Табл.3. Вероятности радиационного распада метастабильных  $^3P_0$ - и  $^3P_2$ -уровней, индуцированные сверхтонким взаимодействием в фермионных изотопах щелочноземельных атомов и в атоме Yb.

Атом	Переход	$F$	$A_{ki}$ ( $s^{-1}$ )	Литература
$^{25}Mg$	$^3P_0 - ^1S_0$	5/2	$4.44 \times 10^{-4}$	[52]
			$4.2 \times 10^{-4}$	[55]
	$^3P_2 - ^1S_0$	3/2	$2.25 \times 10^{-4}$	[52]
			$1.4 \times 10^{-4}$	[55]
	$^3P_2 - ^1S_0$	5/2	$4.65 \times 10^{-4}$	[52]
			$2.9 \times 10^{-4}$	[55]
$^{43}Ca$	$^3P_2 - ^1S_0$	7/2	$5.02 \times 10^{-4}$	[52]
			$3.1 \times 10^{-4}$	[55]
	$^3P_0 - ^1S_0$	7/2	$2.22 \times 10^{-3}$	[52]
$^3P_2 - ^1S_0$	5/2	$1.02 \times 10^{-3}$	[52]	
	7/2	$1.81 \times 10^{-3}$	[52]	
	9/2	$1.74 \times 10^{-3}$	[52]	
$^{87}Sr$	$^3P_0 - ^1S_0$	9/2	$7.58 \times 10^{-3}$	[52]
			$6.3 \times 10^{-3}$	[29]
			$5.5 \times 10^{-3}$	[56]
	$^3P_2 - ^1S_0$	7/2	$4.01 \times 10^{-3}$	[52]
		9/2	$6.81 \times 10^{-3}$	[52]
		11/2	$6.38 \times 10^{-3}$	[52]
$^{171}Yb$	$^3P_0 - ^1S_0$	1/2	$4.35 \times 10^{-2}$	[52]
			$5.0 \times 10^{-2}$	[57]
$^3P_2 - ^1S_0$	3/2	$9.18 \times 10^{-2}$	[52]	
$^{173}Yb$	$^3P_0 - ^1S_0$	5/2	$3.85 \times 10^{-2}$	[52]
			$4.3 \times 10^{-2}$	[57]