

УДК 621.3.038.823

С. П. БАЖУЛИН, Н. Г. БАСОВ, В. С. ЗУЕВ, А. В. КАНАЕВ,
Л. Д. МИХЕЕВ и А. П. ШИРОКИХ

ЛАЗЕРНЫЕ ГАЗОВЫЕ СРЕДЫ С БОЛЬШОЙ
ТЕПЛОСТОЙКОСТЬЮ

Введение

Цель данной статьи — обратить внимание на одну из особенностей некоторых активных сред, используемых или предлагаемых для использования в газовых лазерах с некогерентной оптической накачкой. Речь пойдет о теплостойкости рабочих веществ, которые не разрушаются или восстанавливаются в процессе накачки.

Механизмы оптического возбуждения, реализуемые в таких веществах, можно упрощенно проиллюстрировать с помощью диаграмм, представленных на рис. 1. Диаграмма рис. 1, а иллюстрирует так называемый способ прямого оптического возбуждения молекулярных газов, в данном случае по четырехуровневой схеме.

На самом деле реализованный в настоящее время механизм прямой оптической накачки молекулярного иода или предлагаемая схема прямого оптического возбуждения ультрафиолетовой генерации на молекулярном хлоре выглядят несколько сложнее вследствие того, что нижнее лазерное состояние A' является слабосвязанным ($D_e \approx 2500 \text{ см}^{-1}$) и практически полностью диссоциирует во время генерации. Кроме того, оба этих соединения обладают дополнительными полосами поглощения, приводящими к их фотодиссоциации. Поэтому релаксация $A' \rightarrow X$ в данных случаях происходит через диссоциацию A' -состояния и последующую рекомбинацию атомов галогенов в исходную молекулу в основном состоянии, что не меняет сути дела.

Вторая диаграмма (рис. 1, б) описывает механизм возбуждения экс-

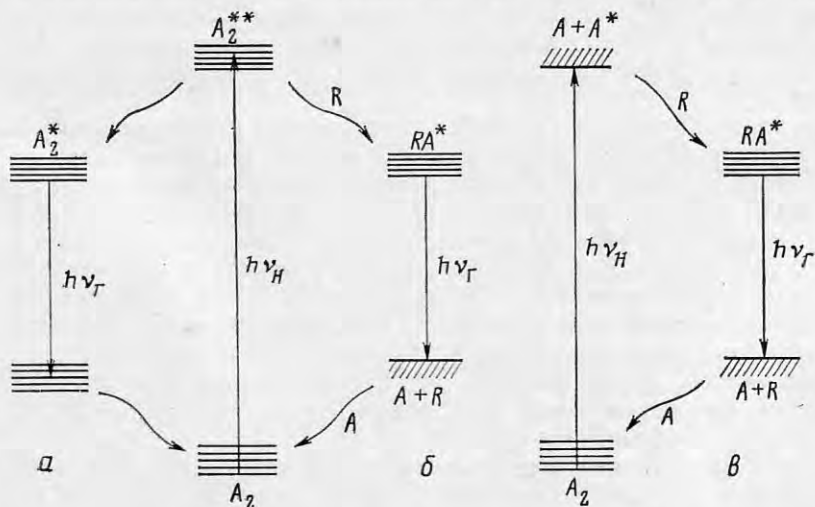


Рис. 1. Схема замкнутых лазерных циклов

№ п. п.	Переход	λ , нм	Энергия, Дж	Удельная энергия, Дж·л ⁻¹	КПД, %	Ссылка
1	XeF ($B^2\Sigma_{1/2} \rightarrow X^2\Sigma_{1/2}$)	351	28	19	0,8	[5]
2	XeF ($C^2\Pi_{3/2} \rightarrow A^2\Pi_{3/2}$)	483	15	10	0,15	[5]
3	I ₂ ($D'^3\Pi_{2g} \rightarrow A'^3\Pi_{2u}$)	342	27	18	1,0	[6]
4	XeO ($2^1\Sigma^+ \rightarrow 1^1\Sigma^+$)	538	2	3	—	[7]
5	IF ($D'^3\Pi_{2g} \rightarrow A'^3\Pi_{2u}$)	491	0,1	—	—	[8]
6	Kr ₂ F ($4^2G \rightarrow 1^2G, 2^2G$)	450	—	—	—	[9]
7	HgBr ($B^2\Sigma^+ \rightarrow X^2\Sigma^+$)	502	—	—	—	[10]
8	HeH ($A^2\Sigma \rightarrow X^2\Sigma$)	310–675	—	—	—	[11]
9	Cl ₂ ($D'^3\Pi_{2g} \rightarrow A'^3\Pi_{2u}$)	258	—	—	—	[12]
10	KrCl ($B^2\Sigma_{1/2} \rightarrow X^2\Sigma_{1/2}$)	222	—	—	—	[12]
11	XeCl ($B^2\Sigma_{1/2} \rightarrow X^2\Sigma_{1/2}$)	308	—	—	—	[12]
12	Xe ₂ Cl ($4^2G \rightarrow 1^2G, 2^2G$)	490	—	—	—	[12]

мерных состояний в гарпунных реакциях возбужденных молекул с атомами благородных газов. И наконец, в основе третьего механизма (рис. 1, в) лежит фотодиссоциация с образованием возбужденных продуктов, которые рекомбинируют с атомами благородных газов, образуя эксимеры. В двух последних случаях исходное вещество также восстанавливается за счет рекомбинации при достаточно высоких концентрациях атомов благородных газов.

Представленные на рис. 1 механизмы возбуждения интересны тем, что исходные молекулы могут совершать много лазерных циклов. Это должно приводить к увеличению удельного энергосъема как с единицы объема, так и с единицы массы. Однако возникает вопрос: каковы предельные значения удельных характеристик, которые могут быть получены с использованием данных механизмов? Очевидно, что они не бесконечны, поскольку неизбежен нагрев рабочей смеси, изменение вследствие этого скоростей физико-химических процессов и функций распределения в верхнем и нижнем лазерных состояниях и в конечном счете исчезновение инверсии.

Рассмотрим вопрос о теплостойкости на примере конкретных рабочих веществ, умышленно отвлекаясь от технических проблем достижения предельных характеристик и задаваясь целью выяснить внутренние возможности механизмов генерации, определяемые физико-химическими процессами в среде. Список лазерных переходов и механизмов их возбуждения, реализованных в настоящее время при неселективной оптической накачке, чрезвычайно велик. Он насчитывает свыше 20 переходов, лежащих от ИК-области до УФ-области спектра (см., например, [1–3] и цитируемую там литературу). Некоторые из них — видимого и УФ-диапазонов спектра, реализованные (№ 1–7) или предлагаемые для использования (№ 8–12) при накачке излучением открытого сильноточного разряда [4], приведены в таблице.

Как видно из таблицы, наиболее значительные результаты получены на XeF (в видимом и УФ-диапазонах), I₂ и XeO. В случае I₂-лазера КПД определялся как энергия генерации, отнесенная к электрической энергии, запасенной в батарее конденсаторов [6], а для XeF-лазеров — как отношение мощности генерации в первые 5 мкс к мощности, вводимой в открытый разряд [5]. В случае XeF-лазеров результаты получены при нецентральной расположении источника накачки, когда последний находился на краю активной области и только приблизительно 40% его излучения использовалось для возбуждения. С пересчетом на полный поток, излучаемый источником, можно полагать, что при помещении заряда в центре активного объема технический КПД должен достигать 0,8% в УФ-области и 1% в видимой области спектра [5].

Из всех приведенных в таблице переходов только в случае I₂-лазера и предлагаемых механизмов рабочая среда обладает способностью самовосстанавливаться в процессе накачки. Остановимся на более подробном обсуждении теплостойкости этих механизмов.

Рис. 2. Схема лазерного цикла в I₂-лазере

Рис. 3. Схема потенциальных кривых нижних электронных состояний и спектр излучения (расчет) молекулы HeH*

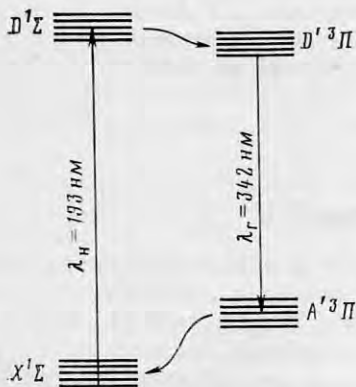


Рис. 2

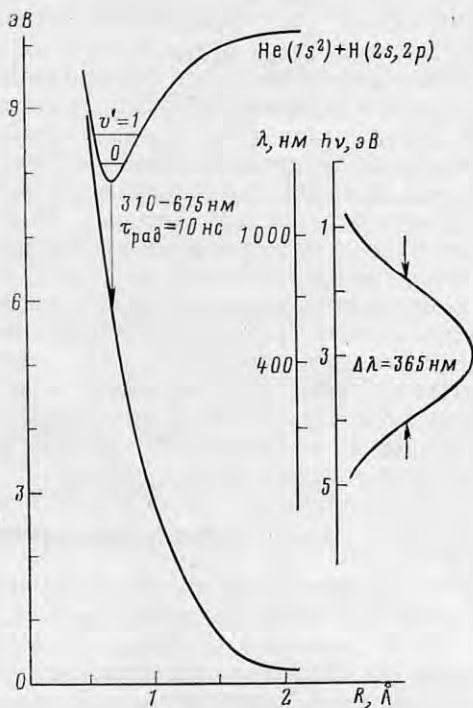


Рис. 3

I₂-лазер

На рис. 2 приведена упрощенная схема лазерного цикла на молекуле иода. Релаксация $D \rightarrow D'$ происходит при столкновении с частицами буферного газа. Как уже указывалось, переход $A' \rightarrow X$ происходит через диссоциацию A' и последующую рекомбинацию атомов иода.

Оценки, основанные на удельной энергии лазерной генерации $18 \text{ Дж} \cdot \text{л}^{-1}$, показывают, что в I₂-лазере молекула иода совершает несколько повторяющихся циклов возбуждения и излучения. В процессе совершения одного цикла в виде тепла рассеивается 10^{-10} кал. При теплоемкости используемой смеси I₂ + CF₄, $1,5 \cdot 10^{-23}$ кал/молек·град и концентрации молекул 10^{20} см^{-3} скорость повышения температуры при интенсивности возбуждения $W = 4 \cdot 10^{21} \text{ см}^{-3} \cdot \text{с}^{-1}$ составит около $3 \cdot 10^5$ град·с⁻¹. Используемая в оценках мощность накачки превышает пороговую $W_{\text{пор}} = 10^{20} \text{ см}^{-3} \cdot \text{с}^{-1}$ [13] и соответствует яркостной температуре источника накачки 12 кК . Такая температура может быть получена в дуговом разряде при атмосферном давлении [14], представляющем интерес для непрерывного режима генерации.

В [15] исследовалась зависимость флуоресценции молекулярного иода в полосе 342 нм в смеси с гексафторидом серы. Интенсивность флуоресценции не изменялась при нагреве до 425°C , что указывает на независимость квантового выхода флуоресценции, достигающего 50% [16], от температуры. Спектр флуоресценции сдвигался в коротковолновую сторону, что объясняется увеличением населенности высоких колебательных уровней D' -состояния. Следовало бы ожидать, что по этой же причине населенность лазерных уровней A' -состояния также будет возрастать. Однако с увеличением температуры растет константа скорости диссоциации и эта зависимость оказывается более сильной [13]. В результате нижние лазерные уровни будут опустошаться более эффективно, что приведет к увеличению КПД лазера.

В [17] приводятся экспериментальные данные, свидетельствующие о появлении поглощения в спектральной области лазерной генерации при нагревании паров иода до 775°C . Из этих данных следует, что допустимым является нагрев до $\sim 600^\circ \text{C}$, сопровождающийся возникновением потерь

на уровне 10^{-4} см⁻¹ при рабочем давлении паров пода ~ 3 мм рт. ст. Указанная температура будет достигнута через $2 \cdot 10^{-3}$ с. Если считать, что в лазерное излучение будет преобразовано 25% квантов накачки [6], то за это время излучится $2 \cdot 10^{18}$ квант/см³ или $1,2$ Дж·см⁻³, что соответствует 100 Дж·г⁻¹ смеси $\text{CF}_4 : \text{I}_2$ при плотности смеси 3 Амага. Не исключена возможность применения газа-разбавителя с меньшим молекулярным весом, что позволило бы увеличить удельный энергоъем.

В настоящее время выводы о высокой теплостойкости рабочей смеси I_2 -лазера нашли экспериментальное подтверждение, правда, пока в ограниченном диапазоне температур: от 100 до 270°C . Исследования проводились на высокотемпературной установке, описанной в [10], с рабочей смесью состава $\text{I}_2 : \text{CF}_4 = 1 : 1300$ при концентрации 2,2 Амага. В указанном диапазоне температур энергия генерации была постоянной. При 270°C и выше наблюдалось исчезновение I_2 в рабочей камере, по-видимому, из-за реакции с конструктивными материалами камеры. Окончательный ответ на вопрос о теплостойкости рассмотренной смеси требует дальнейшего экспериментального исследования.

Оптическое возбуждение HeN

В настоящее время в литературе обсуждается возможность получения лазерной генерации на эксимере HeN . Эта молекула интересна тем, что переход из первого возбужденного состояния $A^2\Sigma$ происходит на высокий участок отталкивательной кривой нижнего разлетного состояния, характеризующийся большой крутизной потенциала взаимодействия (см. рис. 3). Указанное обстоятельство обуславливает широкий спектр излучения с центром на $\lambda_{\text{макс}} = 400$ нм, простирающийся от УФ-области до ИК-области спектра ($\Delta\lambda_{1/2} = 365$ нм).

Для возбуждения $\text{HeN}^*(A^2\Sigma)$ предлагается два способа накачки: электронный [18] и оптический [11]. Каждый из них имеет свои преимущества и недостатки. Особенностью оптического способа является то, что он в значительно меньшей степени по сравнению с электронным подвержен действию тепла. Дело в том, что при электронном способе накачки образование HeN^* идет в процессе диссоциативной рекомбинации иона He_2N^+ , обладающего низкой прочностью химической связи ($\sim 0,6$ эВ [18]). При нагревании смеси He_2N^+ распадается на HeN^+ и He , снижая тем самым скорость возбуждения HeN^* .

В основе предлагаемого в [11] оптического способа накачки HeN^* лежит фотолит H_2 в смеси с гелием. Молекулярный водород поглощает фотоны в области короче 85 нм и в диапазоне длин волн 85–80,4 нм, диссоциирует с образованием возбужденных атомов водорода в состояниях $2s$, $2p$ (квантовый выход этого процесса близок к единице [19]). Образование эксимера $\text{HeN}^*(A^2\Sigma)$ происходит в ходе реакции трехтельной рекомбинации H^* с He . Для эффективной передачи возбуждения с H^* на HeN^* предполагается использовать такую концентрацию гелия, которая обеспечила бы более высокую скорость трехтельной рекомбинации по сравнению с радиационным и безызлучательным распадом H ($2s$, $2p$).

Как показывают оценки [11], при $[\text{H}_2] \approx 2 \cdot 10^{17}$ см⁻³, что обеспечивает поглощение излучения накачки в слое рабочего вещества порядка 1 см, при $[\text{He}] \approx 5 \cdot 10^{20}$ см⁻³ и при потоке в полосу поглощения водорода $I = 10^{24}$ см⁻²·с⁻¹ коэффициент усиления на переходе HeN ($A-X$) составит $5 \cdot 10^{-2}$ см⁻¹. Данный поток соответствует яркостной температуре источника накачки 60 кК. Не останавливаясь на рассмотрении конкретных путей технической реализации лазерной генерации на HeN , отметим лишь, что необходимая яркостная температура достижима при использовании открытого сильнооточного разряда [20], ударного сжатия газов [21], в лазерной плазме [22]. Возможно использование также эксимерной накачки излучением He_2^* и Ne_2^* , спектры испускания которых совпадают с полосой поглощения H_2 [14].

Важной особенностью предлагаемого способа оптического возбуждения HeN является наличие процесса рекомбинации нормальных атомов водо-

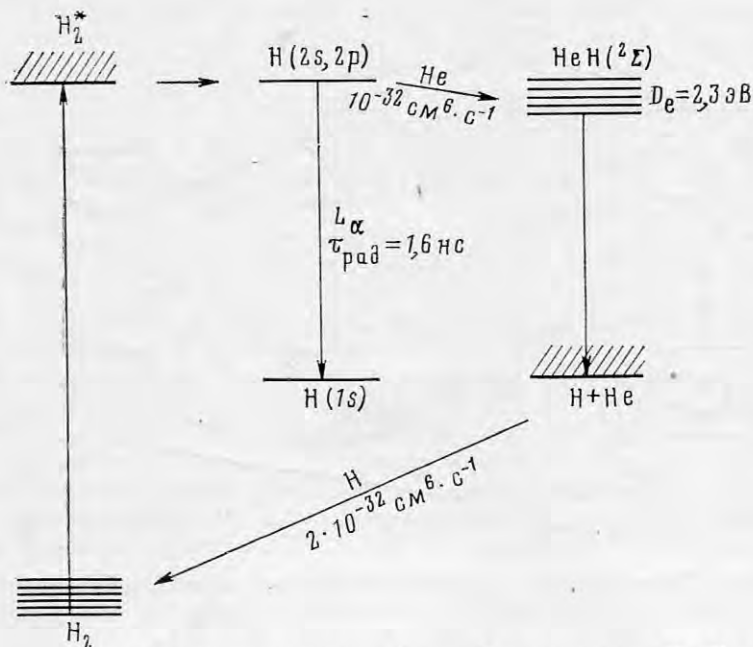


Рис. 4. Схема процессов при фотовозбуждении смеси He+H₂

рода в исходную молекулу, который замыкает лазерный цикл (см. рис. 4) и позволяет использовать каждую молекулу в нескольких циклах. В указанных выше условиях устанавливается стационарная концентрация молекулярного водорода, равная приблизительно половине исходной [11].

Как показывает анализ, в случае рассматриваемого механизма возбуждения теплостойкость смеси определяется главным образом особенностями молекулярного строения HeH: прочностью химической связи в возбужденном состоянии, определяющей равновесную концентрацию эксимеров, и потенциалом взаимодействия нормальных атомов водорода и гелия в области равновесного межъядерного состояния в $A^2\Sigma$ -состоянии, определяющим населенность нижнего лазерного состояния. Эти величины оказываются достаточно высокими (соответственно 2,34 эВ [23] и ~ 5 эВ [11]) и должны в принципе обеспечивать высокую теплостойкость смеси. Чтобы это продемонстрировать, зададимся для определенности пороговым коэффициентом усиления активной среды $2 \cdot 10^{-3} \text{ см}^{-1}$. Тогда, как показывают оценки, с учетом колебательного распределения в возбужденном состоянии и диссоциации возбужденного состояния рабочая смесь может выдерживать нагрев до 6 кК. Если при этом учесть, что за один полный генерационный цикл накачка — лазерное излучение — рекомбинация в тепло выделяется

$$Q = E_n - E_r = 12,5 \text{ эВ},$$

где $E_n = 15,5$ эВ — энергия кванта накачки ($\lambda = 80$ нм) и $E_r = 3$ эВ — энергия кванта генерации ($\lambda = 400$ нм), то можно сказать, что каждая молекула H₂ должна выдерживать около сотни лазерных циклов. При этом с учетом допустимого нагрева рабочая смесь позволяет получать до $5 \text{ кДж} \cdot \text{г}^{-1}$ или $15 \text{ Дж} \cdot \text{см}^{-3}$.

Учитывая технические возможности на сегодняшний день, можно сказать, что в случае оптической накачки HeH* нагрев смеси не накладывает каких-либо ограничений на использование смеси He+H₂.

Оптическое возбуждение смесей Cl₂ с благородными газами

И наконец, несколько слов об оставшихся механизмах возбуждения, которые реализуются в смесях Cl₂ с благородными газами. В работе [12] предлагается получать генерацию на Cl₂ ($\lambda = 258$ нм), KrCl ($\lambda = 222$ нм),

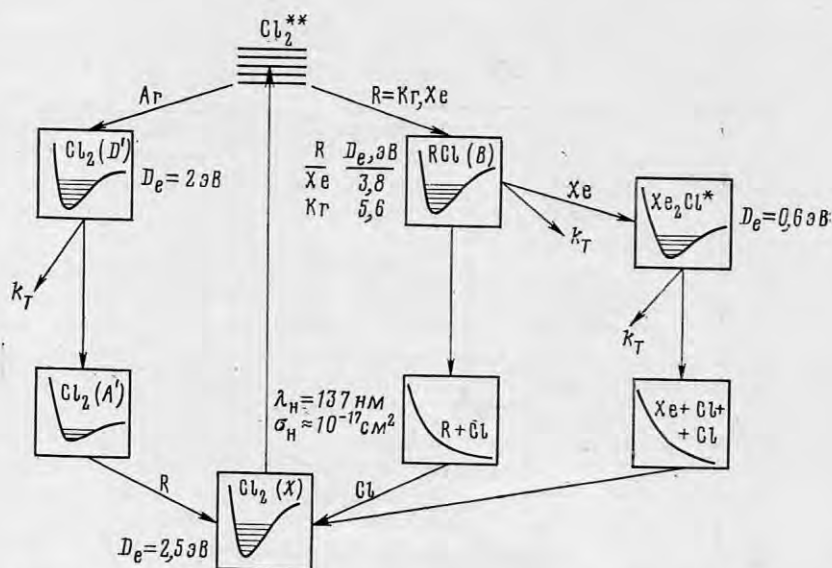


Рис. 5. Схема процессов при фотовозбуждении смеси Cl_2 с благородными газами

$XeCl$ ($\lambda=308$ нм) и Xe_2Cl ($\lambda=500$ нм). Причем коэффициенты усиления на перечисленных переходах, ожидаемые при оптической накачке излучением открытого сильноточного разряда, составляют соответственно 0,03; 0,1; 0,3 и $0,04 \text{ см}^{-1}$ [12].

На рис. 5 приведена схема основных процессов, которые ведут к образованию возбужденных продуктов. Общим процессом для них является оптическое возбуждение Cl_2 , которое в зависимости от состава рабочей смеси может быть затем использовано для получения различных излучающих состояний. Так, в смесях с Ar, Ne или He происходит релаксация Cl_2 в нижележащее ионное состояние D' , из которого молекула переходит в A' -состояние, излучив квант света на длине волны около 258 нм. Этот переход аналогичен рабочему переходу I_2 -лазера, о котором шла речь выше.

В смеси Cl_2 с Kr или Xe возбужденные состояния Cl_2 реагируют с атомами благородного газа, образуя эксимеры $KrCl^*$ или $XeCl^*$. Их излучение лежит в области соответственно 222 и 308 нм. Если в качестве буфера использовать только Xe при давлении выше 1 атм, то эксимеры $XeCl^*$ рекомбинируют с Xe и образуют тройные эксимеры Xe_2Cl , излучающие в зеленой области спектра ($\lambda=500$ нм). Согласно выполненным в работе [12] измерениям квантовый выход люминесценции возбужденных состояний достигает 50–80% и может быть доведен до 100% в индуцированном излучении за счет подавления процессов тушения.

Во всех рассматриваемых случаях мы имеем дело с замкнутыми циклами, последним звеном которых является рекомбинация атомов хлора. По оценкам, основанным на константе скорости рекомбинации атомарного хлора, равной $10^{-32} \text{ см}^6 \cdot \text{с}^{-1}$ [24], давление буферного газа должно составлять при этом не менее 3 атм.

Оценка теплостойкости данных смесей представляет собой более сложную задачу по сравнению с предыдущими случаями, поскольку не известны температурные зависимости констант скоростей тушения возбужденных состояний.

Для оценки по максимуму будем считать их независимыми от температуры. Помня, что для I_2 не было обнаружено температурной зависимости квантового выхода флуоресценции, можно думать, что такое предположение не очень сильно повлияет на результат. В этом случае, как и в HeH, теплостойкость смесей будет определяться лишь изменением функций распределения в лазерных состояниях и распадом этих состояний за счет тепловой диссоциации. Задаваясь, как и прежде, пороговым значе-

нием коэффициента усиления $2 \cdot 10^{-3} \text{ см}^{-1}$, можно оценить критическую температуру, выше которой пороговые условия перестанут выполняться, и удельные характеристики, которые можно при этом получить. В смесях Cl_2 : (Ar, Kr, Xe) : He = 1 : 200 : 2800 при $p=3$ атм эти значения составляют соответственно для $\text{Cl}_2(D' \rightarrow A')$: $T_{\text{кр}}=1600 \text{ К}$, $E_{1 \text{ уд}}=3 \text{ Дж} \cdot \text{см}^{-3}$, $E_{2 \text{ уд}}=3 \text{ кДж} \cdot \text{г}^{-1}$; для KrCl : $T_{\text{кр}}=2300 \text{ К}$; $E_{1 \text{ уд}} \approx 5 \text{ Дж} \cdot \text{см}^{-3}$; $E_{2 \text{ уд}} \approx 4 \text{ кДж} \cdot \text{г}^{-1}$; для XeCl : $T_{\text{кр}}=2300 \text{ К}$; $E_{1 \text{ уд}}=3 \text{ Дж} \cdot \text{см}^{-3}$; $E_{2 \text{ уд}}=2 \text{ кДж} \cdot \text{г}^{-1}$.

Предельные значения параметров теплостойкости для Cl_2 определяются в основном диссоциацией $\text{Cl}_2(D')$, а для KrCl и XeCl — диссоциацией Cl_2 в основном состоянии. Для Xe_2Cl в смеси Cl_2 : Xe = 1 : 3000 при $p=3$ атм $T_{\text{кр}}=700 \text{ К}$, $E_{1 \text{ уд}}=0,25 \text{ Дж} \cdot \text{см}^{-3}$, $E_{2 \text{ уд}}=15 \text{ Дж} \cdot \text{г}^{-1}$ определяются энергией связи Xe—Xe в молекуле Xe_2Cl . Еще раз отметим, что данные оценки теплостойкости смесей Cl_2 с благородными газами получены лишь в первом приближении и требуют уточнения с учетом кинетики процессов.

Проведенный анализ теплостойкости показывает принципиальную возможность достижения высоких удельных параметров в рассмотренных рабочих смесях, а в случае I_2 -лазера представляется технически возможным осуществление непрерывного режима генерации с высокими удельными характеристиками и умеренными скоростями протока на уровне нескольких метров в секунду.

Физический институт им. П. Н. Лебедева
Академии наук СССР

Литература

1. Михеев Л. Д. Квантовая электроника, 1978, т. 5, с. 1189.
2. Басов Н. Г., Зуев В. С., Михеев Л. Д., Стойлов Ю. Ю. Изв. АН СССР. Сер. физ., 1980, т. 44, с. 1516.
3. Басов Н. Г., Зуев В. С., Михеев Л. Д., Стойлов Ю. Ю. Изв. АН СССР. Сер. физ., 1982, т. 46, с. 1510.
4. Борович Б. Л., Зуев В. С., Катулин В. А., Михеев Л. Д., Николаев Ф. А., Носач О. Ю., Розанов В. Б. Итоги науки и техники. Сер. Радиотехника, т. 15. Сильноточные излучающие разряды и газовые лазеры с оптической накачкой. М.: ВИНИТИ, 1978.
5. Зуев В. С., Михеев Л. Д., Ставровский Д. Б. Квантовая электроника, 1984, т. 11, 1080.
6. Зуев В. С., Михеев Л. Д., Широких А. П. Квантовая электроника, 1983, т. 10, с. 904.
7. Зуев В. С., Михеев Л. Д., Погорельский И. В. Квантовая электроника, 1979, т. 6, с. 1513.
8. Басов Н. Г., Зуев В. С., Михеев Л. Д., Яловой В. И. Квантовая электроника, 1982, т. 9, с. 1064.
9. Басов Н. Г., Зуев В. С., Канаев А. В., Михеев Л. Д., Ставровский Д. Б. Квантовая электроника, 1980, т. 7, с. 2660.
10. Бажулин С. П., Басов Н. Г., Зуев В. С., Леонов Ю. С., Стойлов Ю. Ю. Квантовая электроника, 1978, т. 5, с. 684.
11. Зуев В. С., Канаев А. В., Михеев Л. Д. Квантовая электроника, 1984, т. 11, 197.
12. Зуев В. С., Канаев А. В., Михеев Л. Д. Квантовая электроника, 1984, т. 11, с. 354.
13. Зуев В. С., Михеев Л. Д., Широких А. П. Квантовая электроника, 1982, т. 9, с. 573.
14. Зайдель А. Н., Шрейдер Е. Я. Спектроскопия вакуумного ультрафиолета. М.: Наука, 1967.
15. Стойлов Ю. Ю. Квантовая электроника, 1978, т. 5, с. 388.
16. Shaw M. J., Edwards C. B., O'Neill F., Fotakis C., Donovan A. J. Appl. Phys. Letts, 1980, v. 37, p. 346.
17. Skorko E. Nature, 1933, v. 131, p. 366.
18. Арсланбеков Т. У., Держиев В. И., Юровский В. А., Яковленко С. И. Препринт ФИАН. № 101. М., 1983.
19. Mentall J. E., Gentien E. P. J. Chem. Phys., 1970, v. 32, p. 5641.
20. Басов Н. Г., Борович Б. Л., Зуев В. С., Стойлов Ю. Ю. ЖТФ, 1968, т. 38, с. 2079.
21. Цикулин М. А., Попов Е. Г. Излучательные свойства ударных волн в газах. М.: Наука, 1977.
22. Немчинов И. В. Изв. АН СССР. Сер. физ., 1982, т. 46, с. 1026.
23. Michels H. N., Harris F. E. J. Chem. Phys., 1963, v. 39, p. 1464.
24. Кондратьев В. Н. Константы скорости газофазных реакций. Справочник. М.: Наука, 1970. 351 с.