

## ВОЗМОЖНОСТЬ СОЗДАНИЯ ХИМИЧЕСКИХ ЛАЗЕРОВ ВИДИМОГО ДИАПАЗОНА НА ПЛАМЕНАХ $H_2$ -F-NF<sub>2</sub>

А.Н. Дворянкин, Ю.А. Кулагин, В.Н. Макаров, В.А. Щеглов

*Показано, что в пламенах  $H_2$ -H-F<sub>2</sub>-F-NF<sub>2</sub> происходит эффективная наработка метастабильных электронно-возбужденных частиц (метастабилей) NF(a), NF(b) и N<sub>2</sub>(A). Использование IF в качестве излучающей частицы позволяет получить коэффициент усиления на переходе IF(B-X),  $\lambda = 625$  нм, равный  $0,2 м^{-1}$ .*

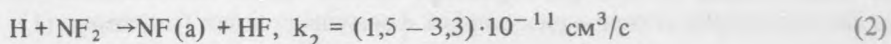
Успех в создании химического кислород-йодного лазера ближнего ИК диапазона /1/ стимулировал поисковые работы в направлении создания химических лазеров видимого диапазона. Наибольшее внимание уделяется донорно-акцепторному способу создания инверсии, при котором наработанный в химических реакциях электронно-возбужденный донор передает в столкновениях свою энергию излучающему акцептору. Ряд способов наработки электронно-возбужденных доноров и подбор донорно-акцепторных пар рассмотрены в работах /2-4/. В качестве потенциальных доноров наибольшее внимание привлекают метастабилей NF(a<sup>1</sup>Δ) ( $T_e = 11435$  см<sup>-1</sup>,  $\tau = 5,6$  с); NF(b<sup>1</sup>Σ<sup>+</sup>) ( $T_e = 18905$  см<sup>-1</sup>,  $\tau = 2 \cdot 10^{-2}$  с), N<sub>2</sub>(A<sup>3</sup>Σ<sub>u</sub><sup>+</sup>) ( $T_e = 49755$  см<sup>-1</sup>,  $\tau = 1,9$  с), где  $T_e$  — энергия электронного возбуждения,  $\tau$  — радиационное время жизни. Одной из наиболее исследованных сред, в которых происходит эффективная наработка этих метастабилей, являются пламена H-NF<sub>2</sub> /5-10/.

В данной работе проведены численные расчеты сверхзвуковых пламен H<sub>2</sub>-F-NF<sub>2</sub> и показана возможность создания химических лазеров видимого диапазона на их основе.

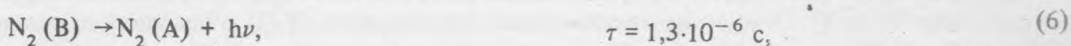
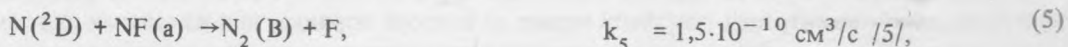
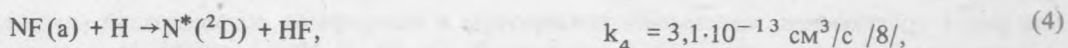
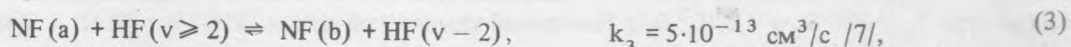
Радикал NF<sub>2</sub> получается при термической диссоциации тетрафторгидразина N<sub>2</sub>F<sub>4</sub> при нагреве до 200 °C /5/. Химическим источником атомарного водорода может служить последовательность реакций /11/



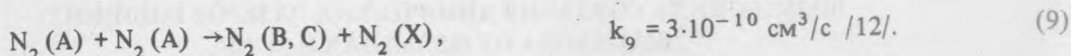
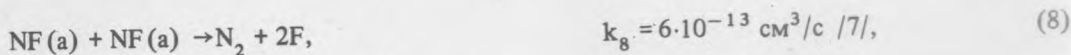
Основным продуктом реакции



является электронно-возбужденный радикал NF(a) /6/. В последующих реакциях происходит наработка атомов N (4S, 2D, 2P), радикала NF(b) и электронно-возбужденных состояний молекулы N<sub>2</sub>(B<sup>3</sup>Π<sub>g</sub>), N<sub>2</sub>(A<sup>3</sup>Σ<sub>u</sub><sup>+</sup>). Важнейшими из них являются

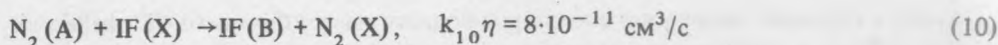


Из-за больших концентраций метастабилей основным каналом тушения являются процессы пулинга:



Непосредственное преобразование энергии электронного возбуждения метастабилей в излучение затруднительно. Заметный коэффициент усиления можно получить на переходе  $\text{NF}(b, v' = 0 \rightarrow X, v'' = 0)$ , где сечение вынужденного излучения равно  $\sigma = 3 \cdot 10^{-19} \text{ см}^2/\text{с}$ . Более реальным способом является передача энергии электронного возбуждения метастабилей акцепторам — атомам или молекулам, имеющим достаточно большое сечение вынужденного излучения.

Наиболее исследованы процессы передачи энергии  $\text{N}_2(A)$ , и для него известно наибольшее число акцепторов ( $\text{IF}, \text{NO}, \text{SO}, \text{S}_2, \text{HgBr}_2$ ) [3]. В качестве акцептора энергии электронного возбуждения  $\text{N}_2(A)$  наиболее изучена молекула  $\text{IF}$ . Константа скорости реакции



велика ( $k_{10} = 2 \cdot 10^{-10} \text{ см}^3/\text{с}$ ) при большом квантовом выходе  $\text{IF}(B)$  ( $\eta = 0,4$ ) [14].

В данной работе численно исследована эффективность наработки метастабилей  $\text{NF}(a, b), \text{N}_2(A)$  в расширяющихся сверхзвуковых пламенах  $\text{H}_2\text{-H-F-NF}_2$  и показана возможность получения коэффициента усиления на переходе  $\text{IF}(B^3\Pi_0^+, v' = 0 \rightarrow X^1\Sigma^+, v'' = 5)$ ,  $\lambda = 625 \text{ нм}$ . Для этого разработана кинетическая модель пламен  $\text{F}_2\text{-F-H}_2\text{-H-NF}_2$ , учитывающая, наряду с (1) — (10), более 130 элементарных процессов химических реакций, процессов E-E, E-V, V-V обмена, радиационного распада и тушения электронно- и колебательно-возбужденных состояний. Модель содержит 29 уравнений для концентраций различных химических веществ, заселенностей электронных состояний  $\text{NF}(X, a, b), \text{N}_2(X, A, B)$  и колебательных уровней  $\text{NF}(v = 0 - 7)$ .

Течение газа рассчитывалось в предположении мгновенного смешения в сверхзвуковой части сопла при скорости потока  $u = 2 \cdot 10^3 \text{ м/с}$ . Профиль сопла выбирался так, чтобы нагрев за счет химических реакций компенсировался газодинамическим охлаждением. Кинетические уравнения для населенностей интегрировались одновременно с уравнениями газовой динамики в одномерном стационарном приближении. Полученная система жестких дифференциальных уравнений решалась методом Гира. В созданной программе предусмотрен ввод и формирование правых частей кинетических уравнений  $u(dc_j/dx) = f_j(k_j, c_j)$  по символической записи молекулярной формулы реакции (например, (1) — (10)) и аррениусовским параметрам константы скорости:  $A_j, n_j, E_j$  ( $k_j = A_j T^{n_j} \exp(-E_j/RT)$ ). Использование генератора правых частей позволило легко менять кинетическую схему и исследовать чувствительность результатов к варьированию кинетических параметров.

Результаты расчетов для сопла, степень расширения которого на расстоянии 1 см от точки смешения равна  $S/S_0 = 3,5$ , представлены на рис. 1, 2. Начальные условия в точке смешения: давление  $p_0 = 150 \text{ торр}$ , температура  $T_0 = 300 \text{ К}$ ,  $u = 2 \cdot 10^3 \text{ м/с}$ . Начальный химический состав: 91% He + 3%  $\text{H}_2$  + 3%  $\text{NF}_2$  + 2,8% F + 0,2% IF.

На рис. 1 представлена зависимость температуры и логарифмов концентраций реагентов:  $\text{H}_2, \text{F}, \text{NF}_2$  и основных продуктов, участвующих в наработке  $\text{N}_2(A, B): \text{H}, \text{NF}(a), \text{NF}(b)$ . На расстоянии  $x = 1 \text{ см}$  от точки смешения концентрация реагентов падает на полтора порядка, при изменении плотности газа за счет расширения в четыре раза. Видно, что существенная часть реагентов преобразуется в электронно-возбужденные радикалы  $\text{NF}(a, b)$ . Отношение максимальной концентрации  $\text{NF}(a)$  к исходной концентрации  $\text{NF}_2$  равно  $[\text{NF}(a)]_{\text{max}}/[\text{NF}_2]_0 = 0,23$ , что с учетом расширения соответствует эффективности конверсии  $\eta = 0,8$ . Выход  $\text{NF}(b)$  существенно ниже  $[\text{NF}(b)]_{\text{max}}/[\text{NF}_2]_0 = 7 \cdot 10^{-3}$ .

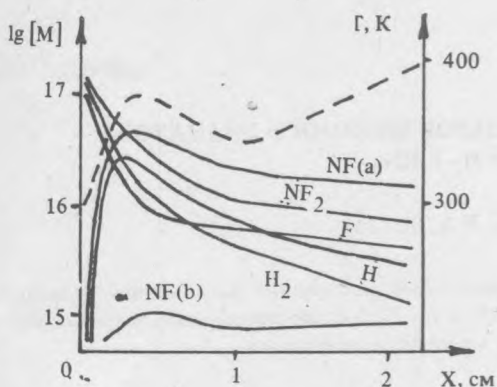


Рис. 1. Зависимость температуры, концентраций исходных реагентов и первичных продуктов от расстояния до точки смешения.

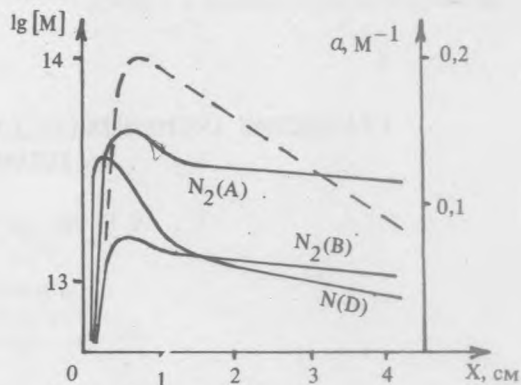


Рис. 2. Зависимость коэффициента усиления  $\alpha$  и концентраций электронно-возбужденных атомов и молекул азота от координаты.

Дальнейшая химическая кинетика системы определяется, в основном, реакциями между радикалами NF (a, b) и H, наработанными в первичных реакциях. На рис. 2 изображены зависимости логарифмов концентраций  $N(^2D)$ ,  $N_2(A)$  и  $N_2(B)$ , являющихся продуктами реакций (4) – (7) с участием электронно-возбужденных NF радикалов. Лимитирующим звеном в наработке электронно-возбужденного азота является реакция (5), в которой нарабатывается  $N(^2D)$ . Отношение максимальной концентрации  $N_2(A)$  к исходной концентрации  $NF_2$  невелико и составляет  $[N_2(A)]_{\max}/[NF_2]_0 = 4 \cdot 10^{-4}$ . Столь малый выход  $N_2(A)$  и NF (b) объясняется отчасти их быстрым тушением в столкновениях с акцептором IF (X). Штриховой линией на рис. 2 изображена зависимость коэффициента усиления на переходе IF (B,  $v' = 0 \rightarrow X, v'' = 5$ ), в предположении равновесного заселения колебательных состояний основного и возбужденного состояний молекулы IF. Максимальное значение коэффициента усиления  $\alpha = 0,2 \text{ м}^{-1}$ , ширина лазерной зоны вниз по потоку  $L = 5 \text{ см}$ .

#### ЛИТЕРАТУРА

1. Pritt A. T. et al. Appl. Phys. Lett., **31**, 745 (1977).
2. Басов Н. Г. и др. Квантовая электроника, **14**, 1754, 1772, 1787 (1987).
3. Басов Н. Г., Дворянкин А. Н., Щеглов В. А. Препринт ФИАН № 136, М., 1988.
4. Дворянкин А. Н., Щеглов В. А. Краткие сообщения по физике ФИАН, № 12, 31 (1988).
5. Novis F. E. et al. J. Phys. Chem., **92**, 5133 (1988).
6. Koffend J. B., Gardner C. E., Heidner R. F. J. Chem. Phys., **83**, 2904 (1985).
7. Habdas J., Wategaonkar S., Setser D. W. J. Phys. Chem., **91**, 451 (1987).
8. Davis S. J., Rawlins W. T., Piper L. G. J. Phys. Chem., **93**, 1078 (1989).
9. Herbelin J. M. Appl. Opt., **25**, 2138 (1986).
10. Koffend J. B. J. de Physique, Coll. C7, Suppl. 12, **48**, 325 (1987).
11. Башкин А. С. и др. Химические лазеры, М., Наука, 1982.
12. Piper L. G. J. Chem. Phys., **88**, 231 (1988).
13. Hyangki Cha, Setser D. W. J. Phys. Chem., **91**, 3758 (1987).
14. Piper L. G. et al. J. Chem. Phys., **83**, 5602 (1985).

Поступила в редакцию 7 августа 1989 г.