

## ЭЛЕКТРОНЫ ПЛАЗМЫ И КОЛЕБАТЕЛЬНАЯ РЕЛАКСАЦИЯ ЭКСИМЕРНЫХ МОЛЕКУЛ ГАЛОГЕНИДОВ БЛАГОРОДНЫХ ГАЗОВ

П.Б.Сергеев

Рассмотрена роль электронов плазмы в колебательной релаксации эксимерных молекул галогенидов благородных газов. Показано, что этот процесс может снижать КПД указанных лазеров при степени ионизации активной среды выше  $10^{-5}$ .

Наиболее сильная генерация в эксимерных лазерах на галогенидах благородных газов (ГБГ) происходит с одного или нескольких низших колебательных уровней состояния В молекул RX\* ( $R = Ar, Kr, Xe; X = F, Cl$ ). У таких молекул существуют и другие состояния, из которых ближайшими к В являются С и D. Каждое из них обладает колебательно-вращательной структурой. Поэтому для понимания особенностей работы лазеров на ГБГ требуется знание не только процессов формирования и тушения молекул RX\*, но и динамики их релаксации по внутримолекулярным уровням.

При описании внутримолекулярной релаксации сейчас учитывается взаимодействие RX\* лишь с компонентами рабочей газовой смеси (РГС) /1-2/. Но с ростом удельной мощности накачки W возрастает концентрация плазменных электронов  $n_e$ , а, следовательно, должна возрастать их роль в различных процессах кинетики активной среды. Цель настоящей работы — показать, что плазменные электроны из-за участия в колебательной релаксации молекул RX\* могут оказывать существенное влияние на эффективность среды лазеров на ГБГ  $\eta$ , определяемую как отношение энергии генерации к энергии, введенной в активную область.

Рассмотрим колебательную релаксацию молекул RX\* в состоянии В, следуя общепринятой модели /1, 2/, но с добавлением, как в /3/, члена, за который ответственны плазменные электроны с температурой  $T_e$ :

$$\dot{N}_0 = -(N_0 - \theta N)/\tau_{VT} - N_0/\tau - N_0/\tau_i - (N_0 - \theta_e N)/\tau_{ve}, \quad (1)$$

$$\dot{N} = R - N/\tau - N_0/\tau_i. \quad (2)$$

Здесь  $N_0 = \sum_{i=0}^{m-1} N_i$  — населенность  $m$  низших колебательных уровней (или уровня), определяющих усиление на лазерной частоте,  $N$  — населенность всего состояния В. Скорость образования молекул R можно представить в виде

$$R = \eta_0 W/\hbar\omega_l, \quad (3)$$

где  $\eta_0$  — эффективность формирования RX\* /1/,  $\hbar\omega_l$  — квант лазерного излучения. Больцмановские факторы  $\theta$  и  $\theta_e$  определяют равновесную заселенность лазерного уровня при колебательной температуре  $T_k$ , равной газовой Т или электронной температуре  $T_e$

$$\theta(T_k) = 1 - \exp(-m\hbar\omega/kT_k), \quad (4)$$

где  $\hbar\omega$  — колебательный квант;  $\tau_{VT}$  и  $\tau_{ve}$  — времена колебательной релаксации при взаимодействии RX\* с компонентами РГС и электронами;  $\tau$  — время жизни состояния В;  $\tau_i = \hbar\omega_l/\sigma I$  — время жизни лазерного уровня при интенсивности лазерного излучения I;  $\sigma$  — сечение перехода, определяющее коэффициент усиления  $g = \sigma N_0 / I$ .

В квазистационарном приближении решение (1) – (2) дает:

$$g(I) = g_0 / (1 + I/I_s); \quad g_0(I=0) = \sigma R \eta_m \tau, \quad (5)$$

$$I_s = (\hbar \omega_l / \sigma) (\tau_{VT}^{-1} + \tau_{ve}^{-1} + \tau^{-1}) [(\theta / \tau_{VT} + \theta_e / \tau_{ve}) \tau + 1]^{-1}, \quad (6)$$

$$\eta_m = (\theta / \tau_{VT} + \theta_e / \tau_{ve}) (\tau_{VT}^{-1} + \tau_{ve}^{-1} + \tau^{-1})^{-1} = \theta(T_k). \quad (7)$$

Для удобства дальнейшего изложения представим  $\eta_m$  в виде, при котором разделены члены, описывающие влияние электронов и атомов РГС на колебательную релаксацию:

$$\eta_m = \eta_a \eta_e; \quad \eta_a = \theta / (1 + \tau_{VT} / \tau), \quad (7a)$$

$$\eta_e = [1 + (\theta_e / \theta) (\tau_{VT} / \tau)] / [1 + \tau_{VT} / \tau_{ve} (1 + \tau_{VT} / \tau)]. \quad (8)$$

При малых концентрациях электронов, т.е. при  $\tau_{ve} \rightarrow \infty$ ,  $\eta_e \rightarrow 1$  и выражения для  $g_0$  и  $I_s$  (5), (6) принимают вид /2/.

Из соотношений (3) – (5) следует, что эффективность формирования верхнего лазерного уровня ( $\eta_f$ ), определяемая через отношение мощности релаксационного потока, проходящего через  $N_0$ , к мощности накачки, является произведением эффективности формирования молекул KrF\* на внутримолекулярную эффективность формирования верхнего лазерного уровня:

$$\eta_f = \eta_0 \eta_m. \quad (9)$$

При учете состояния С, расположенного на  $\Delta E_{BC}$  выше В,  $\eta_m$  из (9) домножится на величину  $\eta_{BC} \cong [1 + + (g_C/g_B) \exp(-\Delta E_{BC}/kT_k)]^{-1}$ , где  $g_C$  и  $g_B$  – статистические веса. При этом, однако, изменяется и значение  $\tau$  /2/. Ниже для простоты изложения наличием состояния С будем пренебрегать.

Из (7), (8) видно, что  $\eta_m$  из-за участия электронов в колебательной релаксации начнет заметно уменьшаться при

$$\tau_{VT} / \tau_{ve} = K_{ve} n_e / K_{VT} N_a \gtrsim 0,1 \text{ или } n_e / N_a \gtrsim 0,1 (K_{VT} / K_{ve}). \quad (10)$$

Здесь  $K_{VT}$  и  $K_{ve}$  – константы скоростей соответствующих процессов,  $N_a$  – концентрация атомов РГС;  $n_e/N_a$  – степень ионизации активной среды.

Для Ar, Kr и молекул KrF\* и XeCl\*  $K_{VT} \cong 5 \cdot 10^{-11} \text{ см}^3/\text{с} /1-3/$ . Близкое значение по оценкам будет иметь  $K_{VT}$  и для ArF\* с  $N_e$ . Открытым, однако, остается вопрос о величине  $K_{ve}$ . Хорошо известно, что при "прямом" возбуждении колебаний молекул электронным ударом  $K_{ve} \leq 10^{-8} \text{ см}^3/\text{с}$ . Но у электроотрицательных молекул, каковыми являются и RX\*, возможен механизм колебательного возбуждения через автоионизационное состояние отрицательного иона (RX\*)<sup>-</sup>. Участием этого состояния, в частности, объясняется относительно высокая скорость тушения электронами молекул RX\* /4/, которая составляет  $(2-3) \cdot 10^{-7} \text{ см}^3/\text{с} /5/$ . Не исключено участие состояний D и C в качестве промежуточных в процессе повышения колебательной температуры состояния В при его взаимодействии с электронами.

Оценка величины  $K_{ve}$  проведена с использованием экспериментальных результатов /6-8/ с учетом следующего. Согласно (5), переход с  $g_0$  является однородно уширенным. Следовательно, максимальный съем энергии с него в виде лазерного излучения  $\eta_r = (1 - \sqrt{a/g_0})^2$ , где  $a$  – коэффициент поглощения активной среды. Тогда полную эффективность лазера можно представить в виде:

$$\eta = \eta_f \eta_r = \eta_0 \eta_m \eta_r = \eta_0 \eta_a \eta_e \eta_r. \quad (11)$$

Подчеркнем, что  $\eta_e$  в (11) входит не только в  $\eta_f$ , но и  $\eta_r$ , так как  $g_0 \sim \eta_e$ .

Далее, согласно (11), вычислялись  $\eta$  для электронно-пучковых лазеров (ЭПЛ) на KrF\* и XeCl\*, работавших при высоких W /6–7/. Дополнительные данные по  $\eta_f$ ,  $\eta_r$  и  $g_0/a$  для реализованных экспериментальных условий брались из /1,3,9/, где они рассчитывались без учета  $\eta_e$ , а  $\eta_e$  подбиралось таким, чтобы расчетное значение  $\eta$  совпадало с экспериментальным. После чего из (8) находилось  $\tau_{ve}$  и затем  $K_{ve}$ .

Для KrF ЭПЛ удается согласовать теоретические значения  $\eta$  /1,9/ с экспериментальными /6/ при введении в (5), (7)  $\eta_e$ , в котором  $K_{ve}(\text{KrF}^*) \cong (2-3) \cdot 10^{-7} \text{ см}^3/\text{с}$ . Напомним, что данное значение относится к группе низких колебательных уровней. Для XeCl ЭПЛ на основе результатов /3,7/ получено  $K_{ve}(\text{XeCl}^*) \cong 5 \cdot 10^{-7} \text{ см}^3/\text{с}$ , что на порядок меньше величины, приведенной в /3/.

Для ArF ЭПЛ оценка  $K_{ve}$  проводилась на основе следующего. Пороговое давление развития генерации на смеси Ne/Ar/F<sub>2</sub> при W = 1 МВт/см<sup>3</sup> и резонаторе с прозрачностью 50% на установке ЭЛ-1 составляло 1,9 атм /8/, а в прифольговой области /7/ на той же смеси и резонаторе, но при W = 4,5 МВт/см<sup>3</sup> порог был при 2,6 атм. Равенство g для этих двух условий можно обеспечить, с учетом (5), если принять для первого случая  $K_{ve}(\text{ArF}^*) \cong 5 \cdot 10^{-7} \text{ см}^3/\text{с}$ , а для второго  $K_{ve}(\text{ArF}^*) \cong 1 \cdot 10^{-6} \text{ см}^3/\text{с}$ .

Различие в значениях  $K_{ve}(\text{ArF}^*)$  можно объяснить тем, что сечение  $\sigma_{ve}$  имеет резонансный характер при возбуждении колебательных уровней через автоионизационное состояние (RX\*)<sup>-</sup> /4/. Поэтому с подогревом электронов в прифольговой области, где существуют электрические поля с напряженностью ~ 1 кВ/см /6/, вполне возможно повышение  $K_{ve}$ . Этим, по-видимому, объясняется и падение  $\eta$  в электроионизационных XeCl и KrF лазерах при полях ~ 0,5 кВ/см·атм по сравнению с электронно-пучковой начинкой /6/.

Таким образом, с точностью до двойки у рассмотренных лазеров на галогенидах благородных газов  $K_{ve}(\text{RX}^*) \cong 5 \cdot 10^{-7} \text{ см}^3/\text{с}$ . Тогда из (10), (11) следует, что электроны плазмы из-за участия в колебательной релаксации будут оказывать всевозрастающее отрицательное воздействие на эффективность среды данных лазеров с ростом степени ионизации газовой смеси выше 10<sup>-5</sup>. Из (7) следует, что физически это обусловлено повышением эффективной колебательной температуры состояния В. Отметим, что в XeCl лазере электроны плазмы могут играть и положительную роль, ускоряя расселение нижнего лазерного уровня за счет перевода молекул RX из состояния X в A с его быстрым развалом.

Автор благодарен А.Г.Молчанову, И.В.Кочетову, А.В.Демьянову и А.А.Дерюгину за полезные замечания, высказанные при обсуждении настоящей работы.

#### ЛИТЕРАТУРА

1. Молчанов А. Г. Труды ФИАН, 171, 54 (1986).
2. Kappari F., Shaw M. J., O'Neill F. J. Appl. Phys., 61, 476 (1987).
3. Kappari F. et al. IEEE J. of Quantum Electronics, QE-19, 1587 (1983).
4. Елецкий А. В., Смирнов Б. М. ЖЭТФ, 84, 1639 (1983).
5. Trainor D. W., Jacob J. H. Appl. Phys. Lett., 37, 675 (1980).
6. Клементов А. Д., Морозов Н. В., Сергеев П. Б. Краткие сообщения по физике ФИАН, № 12, 51 (1986); Квантовая электроника, 15, 276 (1988).
7. Клементов А. Д., Морозов Н. В., Сергеев П. Б. Квантовая электроника, 12, 1607 (1985).
8. Клементов А. Д., Морозов Н. В., Сергеев П. Б. Квантовая электроника, 13, 1730 (1986).
9. Kappari F., Obara M., Fujio T. J. Appl. Phys., 53, 135 (1982).

Поступила в редакцию 11 января 1988 г.