

А.В. Карелин, О.В. Симакова

КИНЕТИЧЕСКАЯ МОДЕЛЬ ИК-ЛАЗЕРА С ЯДЕРНОЙ НАКАЧКОЙ НА СМЕСИ He–Ne–CCl<sub>4</sub>

Представлены подробная нестационарная кинетическая модель активной среды и результаты численных расчетов для лазера с ядерной накачкой на ИК-переходах атома хлора в смеси высокого давления He–Ne–CCl<sub>4</sub>. На основе сравнения результатов расчета с экспериментом установлен механизм создания инверсии для рабочих переходов с длинами волн излучения 1,59 и 2,45 мкм. Определены оптимальные условия генерации.

Недавно появились сообщения о получении относительно мощной генерации в лазере с ядерной накачкой (ЛЯН) на атомарных переходах хлора в смеси He–Ne–CCl<sub>4</sub> [1]. Отличительной особенностью работы данного лазера оказалось чрезвычайно низкое (~ 10 мТорр) парциальное давление лазерно-активной компоненты среды при достаточно высоком давлении буферных газов (1 атм He и 1 атм Ne). При этом механизм генерации остался неясным. В [1] было высказано лишь предположение о том, что наиболее вероятным механизмом заселения верхних лазерных уровней может быть ион-ионная рекомбинация отрицательных ионов хлора с положительными ионами инертных газов. Кроме того, в ней упоминалась возможная роль процессов диссоциативного возбуждения.

В данной статье представлены результаты теоретического исследования механизма возникновения генерации в рассматриваемом лазере. Была построена подробная нестационарная кинетическая модель лазера с ядерной накачкой на смеси He–Ne–CCl<sub>4</sub>. На ее основе проводились расчеты кинетики плазмохимических процессов в активной среде (АС), а также мощности и КПД генерируемого излучения с  $\lambda = 1,59$  и 2,45 мкм. Исходными данными (форма импульса накачки, состав смеси, пропускание зеркал) служили данные экспериментов [1]. Для численного моделирования использовался комплекс программ «ПЛАЗЕР» [2].

1. Кинетика плазмы в смеси He–Ne–CCl<sub>4</sub>

В кинетической модели лазера на смеси He–Ne–CCl<sub>4</sub> рассматривались следующие компоненты плазмы: He<sup>+</sup>, He<sub>2</sub><sup>+</sup>, He<sub>3</sub><sup>+</sup>, He<sup>\*</sup>, He<sub>2</sub><sup>\*</sup>, Ne<sup>+</sup>, Ne<sub>2</sub><sup>+</sup>, Ne<sub>3</sub><sup>+</sup>, Ne<sup>\*</sup>, Ne<sub>2</sub><sup>\*</sup>, HeNe, HeNe<sup>\*</sup>, Cl<sup>+</sup>, Cl<sub>2</sub><sup>+</sup>, CCl<sup>+</sup>, CCl<sub>2</sub><sup>+</sup>, CCl<sub>2</sub><sup>+</sup>, CCl<sub>3</sub><sup>+</sup>, CCl<sub>4</sub><sup>+</sup>, C<sup>+</sup>, C<sup>-</sup>, Cl<sup>-</sup>, а также 9 возбужденных уровней хлора (3d<sup>4</sup>F<sub>9/2</sub>, 3d<sup>4</sup>D<sub>5/2,7/2</sub>, 4p<sup>4</sup>D<sub>5/2,7/2</sub>, 4p<sup>4</sup>P<sub>5/2,3/2</sub>, 4s<sup>4</sup>P<sub>5/2</sub> и высоковозбужденное состояние Cl<sup>\*\*</sup>, эффективно учитывающее уровни, лежащие выше 3d состояний). Уровень 4s<sup>4</sup>P<sub>5/2</sub> в модели является эффективным метастабильным состоянием хлора с усредненной вероятностью радиационного распада  $A = 2,4 \cdot 10^5 \text{ с}^{-1}$  (вероятности радиационного распада для всех возбужденных состояний хлора рассчитаны по данным таблиц [3]). Рассмотренные 4p и 3d уровни являются нижними в своих мульт-

типлетах и обладают наибольшими статистическими весами. Поэтому им приписывалась вся заселенность соответствующего мультиплета, что с хорошей точностью соответствует больцмановскому внутримультиметному распределению заселенностей.

Всего в кинетической модели рассматривалось около 250 плазмохимических реакций (ПХР) с участием 34 реагентов, для которых решалась жесткая система нестационарных уравнений баланса. Концентрации электронов  $N_e$  находились из условия квазилинейности плазмы. Кроме того, решались уравнения энергетического баланса для температур газа  $T_g$  и электронов  $T_e$ . Учет рабочего излучения проводился в «нульмерном» приближении [2].

Для расчета ненасыщенного коэффициента усиления  $\alpha_0$  уширение линии рабочего перехода задавалось суммой столкновительной  $\gamma_c$ , обусловленной давлением буферных газов, и доплеровской  $\gamma_d$  ширины. Столкновительная ширина определялась теоретически и корректировалась по найденному в эксперименте значению  $\alpha_0$ . В модели использовалось значение  $\gamma_c = 10^{10} \text{ с}^{-1} \cdot \text{атм}^{-1}$ . Паразитное поглощение рабочего излучения в АС и зеркалах резонатора эффективно учитывалось введением коэффициента  $\kappa^- = 1,1 \cdot 10^{-5} \text{ см}^{-1}$ .

Плазмохимические реакции с взаимным участием He и Ne взяты из нашей кинетической модели лазера на смеси He–Ne–Ar–H<sub>2</sub> [4], где можно найти подробное описание релаксации He–Ne плазмы.

Под действием жесткого ионизатора релаксационный поток с участием гелиевых и неоновых компонент ведет к наработке ионов и возбужденных состояний гелия и неона. При соотношении He:Ne = 1:1 основными компонентами в такой смеси являются ионы и возбужденные состояния неона. Наиболее представлен молекулярный ион Ne<sub>2</sub><sup>+</sup>, концентрация которого превосходит остальные более чем на порядок.

Характерной чертой смеси с содержанием CCl<sub>4</sub> является высокая концентрация отрицательных ионов хлора Cl<sup>-</sup>, сильно влияющих на кинетику плазмы. Эффективная наработка последних происходит в реакциях диссоциативного прилипания электронов:

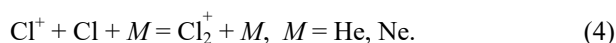


где  $n$  изменяется от 4 до 1.

Константы скоростей для (1), (2) взяты из [5, 6] и задавались в виде сплайнов. Поскольку  $T_e$  в расчетах не превышало 1 эВ, конкурирующие с (2) процессы возбуждения и ионизации  $\text{Cl}_2$  электронами не учитывались в [6].

Ионы  $\text{Cl}^+$  участвуют в процессах тройной ионной рекомбинации с атомарными и молекулярными ионами гелия и неона с образованием промежуточных комплексов  $\text{NeCl}^*$ ,  $\text{HeCl}^*$ , энергия возбуждения которых существенно превосходит потенциал ионизации атома хлора. Распад указанных комплексов является главным источником образования ионов  $\text{Cl}^+$ . Другим, но более слабым источником образования  $\text{Cl}^+$  является перезарядка атомов хлора на ионах буферных газов  $\text{Ne}_2^+$ ,  $\text{He}_2^+$ ,  $\text{Ne}^+$ ,  $\text{He}^+$ .

Далее в реакциях перезарядки и трехчастичной конверсии образуются молекулярные ионы  $\text{Cl}_2^+$ :

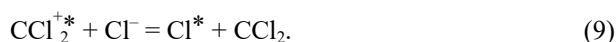


Полученные из условия наилучшего совпадения расчетных и экспериментальных данных константы скоростей для этих реакций принимались равными  $1,2 \cdot 10^{-10} \text{ см}^3/\text{с}$  и  $5 \cdot 10^{-31} \text{ см}^6/\text{с}$ .

## 2. Механизмы создания инверсии на рабочих переходах

Оба исследуемых рабочих перехода  $3d^4F_{9/2} - 4p^4D_{7/2}$  (1,59 мкм) и  $3d^4D_{7/2} - 4p^4D_{7/2}$  (2,45 мкм) имеют общий нижний уровень, и максимальная выходная мощность достигается при одном и том же значении парциального давления  $\text{CCl}_4$  – 30 мТорр [1]. Поэтому в модели способ создания инверсии на данных переходах предполагался одинаковым.

В результате численного моделирования ЛЯН на ИК-переходах атома хлора было установлено, что основными каналами накачки верхних рабочих уровней являются процессы тройной рекомбинации атомарных ионов  $\text{Cl}^+$  с электронами, диссоциативная рекомбинация молекулярных ионов  $\text{Cl}_2^+$ ,  $\text{CCl}_2^+$  и ионно-ионная рекомбинация возбужденного иона  $\text{CCl}_2^{+*}$  с отрицательным ионом  $\text{Cl}^-$ :



Полные константы скоростей реакций (5)–(9) соответственно равны  $2 \cdot 10^{-31} T_e T_e^{-3,5} \text{ см}^6/\text{с}$ ,  $5,4 \cdot 10^{-27} T_e \text{ см}^6/\text{с}$ ,  $2 \cdot 10^{-7} T_e^{-0,5} \text{ см}^3/\text{с}$ ,  $2 \cdot 10^{-7} T_e^{-0,5} \text{ см}^3/\text{с}$ ,  $2 \cdot 10^{-6} \text{ см}^3/\text{с}$  (при полном давлении буферного газа 2 атм). Температура электронов и газа в константах скоростей измеряется в электронвольтах. Далее в модели полагалось, что на верхний рабочий уровень (в.р.у.) линии 1,59 мкм попадает около 50% от полного потока реакций (5)–(7), 60% от потока реакции (8) и (10)% – от потока реакции (9). Для уровня  $3d^4D_{7/2}$  эти величины составляют соответственно 10, 20 и 0%.

Молекулярные ионы  $\text{CCl}_2^{+*}$  и  $\text{CCl}_2^+$  образуются в реакциях Пеннинга молекул  $\text{CCl}_4$  и  $\text{CCl}_2$  с возбужденными атомами и молекулами буферного газа, а также в результате перезарядки атомарных и молекулярных ионов инертных газов на  $\text{CCl}_4$  и  $\text{CCl}_2$ . Эффективная реакция (9) является на самом деле процессом, где сначала образуются возбужденные нестабильные комплексы, после разлета которых образуются атомы хлора в различных возбужденных состояниях.

Относительный вклад процессов (5)–(9) в накачку в.р.у. зависит от содержания  $\text{CCl}_4$  в рабочей смеси. На рис. 1 приведена зависимость потоков накачки от парциального давления  $\text{CCl}_4$ . При давлениях, не превышающих 10 мТорр, процессы (5), (6) играют определяющую роль. В интервале давлений 10–100 мТорр в накачке верхних уровней наиболее активно участвует процесс (7), его поток достигает максимального значения при давлении  $\text{CCl}_4$ , равном 30 мТорр. В области давлений свыше 60 мТорр в накачку включается процесс (8) и при содержании  $\text{CCl}_4$ , большем 100 мТорр, является преобладающим.

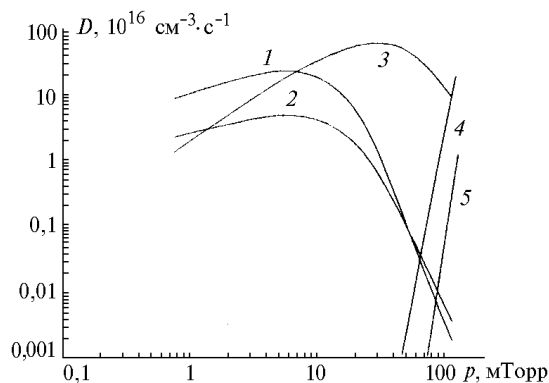


Рис. 1. Зависимости полных потоков  $D$  реакций (1)–(5), участвующих в накачке верхних лазерных уровней от парциального давления  $\text{CCl}_4$  (давление смеси 2 атм,  $\text{He}:\text{Ne} = 1:1$ ,  $\lambda = 1,59$  мкм,  $r_1 = r_2 = 0,998$ ). 1 – (5), 2 – (6), 3 – (7), 4 – (8), 5 – (9)

Очистка нижнего рабочего уровня происходит за счет радиационного распада, а также неупругих столкновений с гелием и неона. Константа тушения атомами буферного газа была принята равной  $10^{-12} \text{ см}^3/\text{с}$ .

Константы скоростей девозбуждения уровней электронами оценивались на основе аппроксимации Ван-Реджемортера. При этом скорости прямых и обратных процессов связывались принципом детального

равновесия. Следует, однако, отметить, что в условиях экспериментов [1] концентрация электронов относительно невелика ( $10^{12}$ – $10^{13}$  см<sup>-3</sup>), поэтому перемешивание ими рабочих уровней не вносит существенных изменений в распределение заселенностей на фоне других релаксационных процессов.

Как отмечалось выше, все расчеты проводились в приближении жесткого ионизатора. При этом влияние трековой структуры плазмы, образованной осколками деления, на выходные параметры лазера не учитывалось, так как характерные времена релаксационных процессов в активной среде ЛЯН на смеси He–Ne–CCl<sub>4</sub>, приводящих к заселению в.р.у., в условиях экспериментов [1] существенно превосходят характерные времена жизни трека, лежащие, согласно [9], в области от 1 до 100 нс. Более того, поскольку влияние трековой структуры на характеристики генерации принципиально возможно только в том случае, когда треки не перекрываются (т.е. при относительно малой мощности накачки) и характерные времена заселения верхних рабочих уровней и развития генерации не превышают характерного времени жизни трековой неоднородности, а скорость заполнения в.р.у. пропорциональна мощности накачки, то трековой структурой в оптимальных условиях генерации для нашей смеси можно пренебречь всегда. Этот вывод, по-видимому, касается всех ЛЯН, у которых в.р.у. заселяется в процессах рекомбинации с участием электронов. Для других лазеров, возбуждаемых осколками деления, требуется более детальный анализ на основе сформулированного выше общего утверждения. Приведенные здесь соображения косвенно подтверждаются результатами исследований [9], где учет диффузии компонентов He–Cd плазмы из первоначальной области трека приводил к существенному уменьшению амплитуды флуктуаций, а возрастание мощности накачки приводило к убыванию влияния трековой структуры на кинетические процессы в плазме.

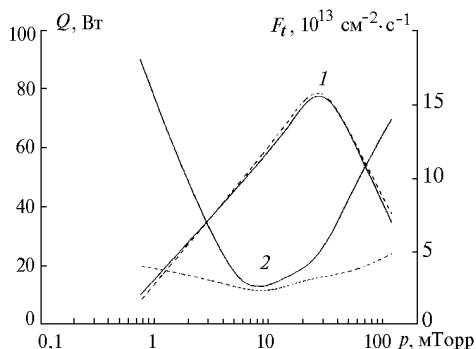


Рис. 2. Зависимость мощности излучения  $Q(I)$  и пороговой плотности потока нейтронов  $F_t$  (2) от парциального давления  $CCl_4$  (давление смеси 2 атм, He:Ne = 1:1,  $\lambda = 1,59$  мкм,  $r_1 = r_2 = 0,998$ ). Сплошная линия – эксперимент, штриховая – расчет

### 3. Результаты расчета и обсуждение

Сравнение полученных на основе расчета по данной модели и экспериментально измеренных ха-

рактеристик лазерной генерации (выходной мощности и пороговой плотности потока нейтронов) приведено на рис. 2–4.

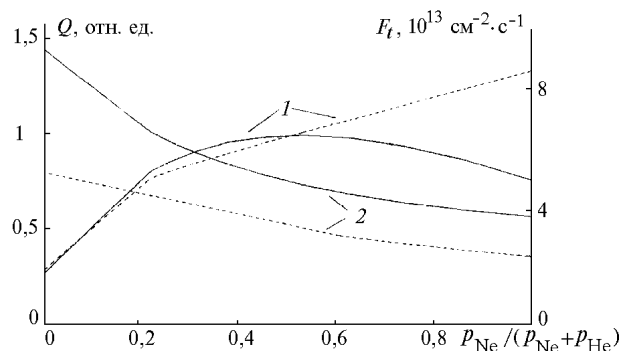


Рис. 3. Зависимость мощности излучения  $Q(I)$  и пороговой плотности потока нейтронов  $F_t$  (2) от относительного содержания неона в смеси He–Ne– $CCl_4$  (давление смеси 2 атм, давление  $CCl_4$  0,03 Торр,  $\lambda = 1,59$  мкм,  $r_1 = r_2 = 0,998$ )

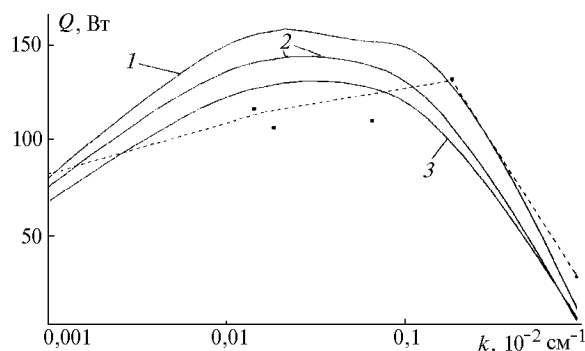


Рис. 4. Зависимость мощности излучения  $Q$  от коэффициента полезных потерь для давлений  $CCl_4$ : 1 – 30 мТорр, 2 – 15 мТорр, 3 – 60 мТорр. Сплошная линия – расчет, пунктир – эксперимент ( $\lambda = 1,59$  мкм, давление смеси 2 атм)

Максимум выходной мощности в зависимости от парциального давления  $CCl_4$  при неизменном давлении буферного газа 2 атм и соотношении He:Ne = 1:1 достигается при  $p_{CCl_4} = 30$  мТорр (см. рис. 2). Он обусловлен конкуренцией процессов роста концентраций  $[Cl]$  и  $[Cl_2]$  и, вследствие этого, концентрации  $[Cl_2^+]$  в реакциях (3) и (4), с одной стороны, и уменьшением числа электронов и роста  $[Cl]$  в процессах (1), (2) – с другой. При давлениях  $CCl_4$ , больших 30 мТорр, генерацию ухудшают также перезарядка  $Cl_2^+$  на атомарном углероде, нарабатываемом в результате различных ПХР, и процессы тушения в.р.у. атомарным и молекулярным хлором.

Минимальное значение пороговой плотности потока нейтронов на линии 1,59 мкм соответствует парциальному давлению  $CCl_4$ , лежащему в области 7–8 мТорр (см. рис. 2). При малых (околопороговых) мощностях накачки верхний рабочий уровень  $3d^4F_{9/2}$  заселяется преимущественно в процессе ион-ионной рекомбинации возбужденных молекулярных ионов  $CCl_2^{+*}$  с отрицательным ионом  $Cl$  (9). Нали-

чие оптимума на зависимости пороговой плотности потока нейтронов от давления  $\text{CCl}_4$  объясняется конкуренцией процессов образования  $\text{CCl}_2^{+*}$  и их исчезновением в реакциях перезарядки на молекулах  $\text{CCl}_4$ , а также тушением в.р.у. молекулами  $\text{CCl}_4$  в реакции



Следует отметить, что привлечение ион-ионной рекомбинации возбужденных ионов  $\text{CCl}_2^{+*}$  потребовалось для описания именно пороговых характеристик генерации, хотя никакой достоверной информацией о них мы не располагаем. Однако можно предположить, что значительная часть молекулярных ионов  $\text{CCl}_2^{+*}$ , образующихся в реакциях перезарядки атомарных и молекулярных ионов инертных газов на  $\text{CCl}_4$ , находится в различных электронно-возбужденных состояниях.

Зависимость выходной мощности излучения от относительного содержания неона в смеси при постоянном суммарном давлении 2 атм приведена на рис. 3. В эксперименте выявлено наличие оптимума по давлению неона, достигаемого при соотношении компонент  $\text{He}:\text{Ne} = 1:1$ . С последующим добавлением неона наблюдался спад мощности. Вероятной причиной этого ухудшения генерации в эксперименте, на наш взгляд, является рост неравномерности энергоснабжения по сечению канала с ростом давления неона. Эффективность энергоснабжения на оси кюветы в чистом неоне с учетом этого фактора ухудшается почти вдвое, согласно оценке на основе работы [10].

Нами проводилось также численное исследование зависимости выходной мощности излучения с  $\lambda = 1,59$  мкм от коэффициента полезных потерь  $\kappa = 1/2L \cdot \ln(1/(r_1 \cdot r_2))$  ( $L$  – активная длина резонанса;  $r_1$ ,  $r_2$  – коэффициенты пропускания зеркал) (см. рис. 4, кривая 1). Максимум расчетной мощности соответствует значению  $\kappa \approx 0,5 \cdot 10^{-3} \text{ см}^{-1}$  (пропускание зеркал около 12–14%), что заметно ниже, чем получено в эксперименте, но при этом имеет более высокую амплитуду. Учет того факта, что концентрация примесей по порядку величины близка к концентрации лазерно-активной компоненты, заставил нас предположить, что на характере экспериментальной кривой могла отразиться разная степень очистки лазерной кюветы в различных опытах, а также некоторая неточность в оценке начальной концентрации  $\text{CCl}_4$ . С целью проверки этого обстоятельства нами был выполнен расчет зависимостей выходной мощности лазерного излучения от  $\kappa$  для разных начальных парциальных давлений  $\text{CCl}_4$  (см. рис. 4, кривые 2, 3). По виду расчетных кривых, приведенных на рисунке, можно сделать предположение, что данная экспериментальная зависимость могла быть получена в результате некоторой неточности (до двух раз) определения начального давления  $\text{CCl}_4$  в различных опытах. Кроме того, соответствующую эксперименту кривую можно получить в результате расчета путем плавного увеличения коэффициента паразитного поглощения рабочего излучения активной

средой и зеркалами в диапазоне от  $\kappa = 1 \cdot 10^{-5} \text{ см}^{-1}$  до  $\kappa \approx 5 \cdot 10^{-4} \text{ см}^{-1}$  с ростом пропускания зеркал резонатора. Не исключено, что в эксперименте имело место влияние обоих указанных факторов.

Рассчитаны зависимости выходной мощности излучения и кпд АС от плотности потока нейтронов  $F_i$  (мощности накачки) в условиях эксперимента [1]. В расчете для линии 1,59 мкм наблюдались сужение импульса генерации с ростом мощности накачки и рост пикового значения мощности генерации. Это обуславливает наличие оптимального значения кпд  $\eta = 0,06\%$  при  $F_i \approx 5 \cdot 10^{15} \text{ н}/(\text{см}^2 \cdot \text{с})$ .

Таким образом, нами построена подробная нестационарная кинетическая модель лазера с ядерной накачкой на атомарных переходах атома хлора ( $\lambda = 1,59$  и 2,45 мкм) в смеси  $\text{He}-\text{Ne}-\text{CCl}_4$ .

На основе численного моделирования установлено, что основные механизмы накачки верхних рабочих уровней зависят от начальной концентрации лазерно-активной компоненты ( $\text{CCl}_4$ ) и мощности накачки. В оптимальных условиях генерации ( $p_{\text{CCl}_4} \approx 30$  мТорр) основным механизмом накачки является диссоциативная рекомбинация молекулярных ионов хлора, образующихся в результате сложной цепи плазмохимических реакций. При малых концентрациях четыреххлористого углерода (менее 7 мТорр) накачка верхнего рабочего уровня осуществляется в процессах тройной рекомбинации атомарных ионов хлора, а при больших (свыше 100 мТорр) – преимущественно за счет диссоциативной рекомбинации молекулярных ионов  $\text{CCl}_2^+$ . При малых (вблизи порога) мощностях накачки на передний план выходит ион-ионная рекомбинация молекулярных ионов  $\text{CCl}_2^+$  с отрицательными ионами хлора. При этом во всех случаях очистка нижних рабочих уровней – радиационная и столкновительная с участием атомов буферного газа.

Оптимальные расчетные характеристики генерации на длине волны 1,59 мкм – мощность  $Q = 160$  Вт и кпд АС  $\eta = 0,12\%$  – в смеси  $\text{He}-\text{Ne}-\text{CCl}_4$  при суммарном давлении смеси 2 атм достигаются при следующих условиях: соотношение  $\text{He}:\text{Ne}:\text{CCl}_4 = 25000:25000:1$ , коэффициент пропускания зеркал резонатора  $T = 12\%$ . Минимальная пороговая плотность потока нейтронов  $F_i \approx 2 \cdot 10^{13} \text{ н}/(\text{см}^2 \cdot \text{с})$ .

1. Мельников С.П., Порхаев В.В. // Квантовая электроника. 1995. Т. 22. N. 9. С. 891–894.
2. Жидков А.Г., Протопопов С.В., Серeda О.В. и др. // Труды ИОФАН. М.: Наука, 1989. Т. 21. С. 116–138.
3. Вайнштейн А.А., Собельман И.И., Юков Е.А. Сечения возбуждения атомов и ионов электронами. М.: Наука, 1973. 144 с.
4. Карелин А.В., Яковленко С.И. // Квантовая электроника. 1995. Т. 22. N 8. С. 769–775.
5. Spanel P. et al. // J. Phys. B. 1995. V. 28. P. 2941–2957.
6. Rogoff L.G., Kramer J.M., Piejak R.B. // IEEE Trans. on Plasma Science. 1986. V. 14. P. 103–111.
7. Будник А.П., Добровольская И.В. // Квантовая электроника. 1997. Т. 24. N 6.
8. Карелин А.В., Серeda О.В., Харитонов В.В. и др. // Атомная энергия. 1986. Т. 61. N 1. С. 44–46.

*A.V. Karelin, O.V. Simakova.* **Kinetic Model of Nuclear-pumped IR-laser in He-Ne-CCl<sub>4</sub> Mixture.**

Detailed non-stationary kinetic model and results of numerical simulation of a nuclear-pumped laser in He-Ne-CCl<sub>4</sub> ( $\lambda = 1.59, 2.45 \mu\text{m}$ ) are submitted. Based on the comparison of the calculated results with the experimental ones, the inversion mechanism at laser transitions 1.59 and 2.45  $\mu\text{m}$  is suggested. Optimum conditions of the generation are determined.