

# Определение доли возбужденных атомов иода, образующихся при диссоциации иодидов в самостоятельном импульсном разряде

Н.П.Вагин, И.В.Кочетов, А.П.Напартович, Н.Н.Юрьшев

*По результатам измерения коэффициента поглощения на переходе атомарного иода в смесях иодидов с гелием определены доли возбужденного атомарного иода, образующегося при диссоциации молекул  $\text{CH}_3\text{I}$ ,  $\text{CF}_3\text{I}$ ,  $i\text{-C}_3\text{F}_7\text{I}$ ,  $\text{C}_2\text{F}_5\text{I}$  и  $\text{C}_2\text{H}_5\text{I}$  в самостоятельном импульсном разряде, которые в смесях иодид–гелий в соотношении 1: (3–15) при давлениях 133–400 Па составляют 0.29 для  $\text{CF}_3\text{I}$  и  $\text{CH}_3\text{I}$ , 0.2 для  $i\text{-C}_3\text{F}_7\text{I}$  и 0.31 для  $\text{C}_2\text{F}_5\text{I}$  и  $\text{C}_2\text{H}_5\text{I}$ . Точность определения доли возбужденного иода равна  $\sim 10\%$ . Численное моделирование было выполнено для смесей, содержащих  $\text{CF}_3\text{I}$ . Расчетные значения доли возбужденного иода для смеси с  $\text{CF}_3\text{I}$  хорошо согласуются с экспериментальными данными.*

**Ключевые слова:** кислородно-иодный лазер, импульсный разряд, диссоциация иодидов, атомарный иод, возбужденные атомы иода.

## 1. Введение

Процессы диссоциации алкилиодидов и перфторалкилиодидов изучаются в течение многих лет. Побудительным мотивом данных исследований является то, что эти соединения широко используются в качестве рабочих сред фотодиссоционных иодных лазеров, генерирующих излучение на атомарных переходах атома иода  $\text{I}(^2\text{P}_{1/2}) \rightarrow \text{I}(^2\text{P}_{3/2})$  с длиной волны  $\lambda = 1.315$  мкм. В связи с этим оказалась крайне востребованной информация о кинетических процессах, участвующих в формировании инверсной населенности в таких лазерах и, в частности, о доле возбужденных атомов в общей концентрации атомов иода, образующихся в процессе диссоциации. Что касается диссоциации иодидов под действием УФ излучения – процесса, наиболее широко используемого для накачки иодного лазера, то, помимо специальных статей, особенности кинетики инверсной населенности изложены в монографиях [1, 2]. Доля возбужденных атомов иода при фотодиссоциации большинства указанных иодидов составляет 90% [1, 2], что способствовало достижению большой энергии излучения (1 кДж [1] и 400 кДж [3]) в фотодиссоционных лазерах. История развития этих лазеров в СССР детально изложена в [4].

В работе [5] приводятся результаты измерений доли возбужденных атомов иода, образующихся при воздействии на молекулы иодидов пучка быстрых электронов с энергией в несколько сотен килоэлектронвольт. Эксперименты проводились при давлениях иодида 66 – 4000 Па и

давлении буферного газа аргона 20 – 80 кПа. Для всех исследуемых иодидов была зарегистрирована большая доля возбужденных атомов (0.65 – 0.8), в частности она составила 0.73 для  $\text{CH}_3\text{I}$ , 0.79 для  $\text{CF}_3\text{I}$  и 0.76 для  $i\text{-C}_3\text{F}_7\text{I}$ . Эти величины существенно превышают значение 1/3, необходимое для достижения инверсии на лазерном переходе атомарного иода. В связи с этим авторами [5] делается вывод о перспективности применения электронных пучков для накачки иодного лазера.

В пионерской работе [6] рассмотрена возможность получения лазерного излучения при диссоциации молекул  $\text{CF}_3\text{I}$  в тлеющем разряде.

В работе [7] сообщается о получении генерации на переходе атомарного иода при возбуждении в поперечном электрическом разряде смеси  $\text{CF}_3\text{I}$  с азотом, а в [8] – смеси  $i\text{-C}_3\text{F}_7\text{I}$  с гелием. Численное моделирование динамики лазерной генерации в условиях возбуждения импульсным разрядом, выполненное авторами работы [9], позволило оценить долю возбужденных атомов иода, которая составила 0.45 для  $\text{CF}_3\text{I}$  и 0.95 для  $i\text{-C}_3\text{F}_7\text{I}$ .

Ранее [10] нами были измерены скорости наработки атомов иода в импульсном самостоятельном разряде в смесях иодидов с буферным газом. В качестве буферного газа использовались гелий и молекулярный азот. Скорость образования атомов иода измерялась методом абсорбционной спектроскопии. Исследовалась диссоциация иодидов  $\text{C}_n\text{F}_{2n+1}\text{I}$  и  $\text{C}_n\text{H}_{2n+1}\text{I}$  ( $n = 1, 2$ ), в результате чего были определены «энергетические цены» образования атомарного иода. Экспериментальные данные, полученные для смеси, содержащей  $\text{CF}_3\text{I}$ , были сопоставлены с результатами численного моделирования. Сравнение результатов расчетов и экспериментов показало их разумное согласие. Измерения концентрации атомов иода после окончания разряда позволили скорректировать результаты наших работ [11, 12] относительно распределения по двум каналам (с образованием возбужденных и невозбужденных атомов иода) процесса преддиссоциации электронно-возбужденных молекул  $\text{CF}_3\text{I}^{**}$  (порог возбуждения электронами 7.2 эВ). Наилучшее согласие с экспериментом достигается при доле атомов иода в возбуж-

Н.П.Вагин, Н.Н.Юрьшев. Физический институт им. П.Н.Лебедева РАН, Россия, 119991 Москва, Ленинский просп., 53; e-mail: yuryshv@rambler.ru

И.В.Кочетов, А.П.Напартович. АО «ГНЦ РФ Троицкий институт инновационных и термоядерных исследований», Россия, 108840 Москва, Троицк, ул. Пушкиных, влад. 12; Физический институт им. П.Н.Лебедева РАН, Россия, 119991 Москва, Ленинский просп., 53; e-mail: kochet@triniti.ru

Поступила в редакцию 6 июля 2017 г., после доработки – 30 августа 2017 г.

денном состоянии, равной 0.7, тогда как в работах [11, 12] она была принята равной 1.0. Заметим, что главный канал образования атомарного иода в основном состоянии – это преддиссоциация электронно-возбужденных молекул  $CF_3I^*$  (порог возбуждения электронами 4.7 эВ) [10–12]. Поэтому общая по всем каналам диссоциации молекулы  $CF_3I$  доля возбужденного иода в условиях импульсного самостоятельного разряда в эксперименте [10] составляла 0.3.

Целью настоящей работы являются экспериментальное исследование эффективности образования возбужденных атомов иода при диссоциации иодидов  $CH_3I$ ,  $CF_3I$ ,  $i-C_3F_7I$ ,  $C_2F_5I$  и  $C_2H_5I$  в продольном импульсном самостоятельном электрическом разряде, моделирование динамики образования и гибели атомов иода в возбужденном и основном состояниях для смеси  $CF_3I$  с гелием, а также сопоставление экспериментальных и расчетных данных.

Интерес к данному направлению связан еще и с тем, что в последние годы ведутся работы по исследованию кислородно-иодного лазера (КИЛ), в котором синглетный кислород получается не в химических реакциях, а в электрическом разряде (см., напр., нашу работу [13] и цитируемую в ней литературу). Наличие дополнительных каналов образования возбужденного иода важно для выбора направления дальнейших исследований.

## 2. Эксперимент

Степень возбуждения атомов иода, образующихся в процессе диссоциации в электрическом разряде, определялась в результате измерений коэффициента поглощения смеси иодида с буферным газом на длине волны перехода  $^3P_{3/2}(F=4) \rightarrow ^2P_{1/2}(F=3)$  между сверхтонкими подуровнями атома иода. Источником зондирующего излучения служил перестраиваемый полупроводниковый лазер с внешним резонатором. Настройка на центр линии поглощения осуществлялась с помощью нагреваемой ячейки с кристаллическим иодом. В цилиндрической кювете с внутренним диаметром 45 мм создавался двухсекционный продольный электрический разряд (в двух разрядных трубках). Суммарная длина двух секций разряда составляла 115 см. Длина поглощения при двойном проходе через зону разряда была равна 230 см. Сигнал поглощения регистрировался германиевым фотоприемником ФД-10 и осциллографом TDS 1012B.

Продольный импульсный самостоятельный разряд питался от батареи конденсаторов емкостью 6.8–20.4 нФ, заряжаемых до напряжения  $U_0 = 10 - 22$  кВ и разряжаемых через тиратрон ТГИ-1000/25. В каждой трубке двухсекционного разряда к электродам подключались конденсаторы емкостью 3.4–10.2 нФ. Детальное описание экспериментальной установки приведено в нашей предыдущей работе [10].

Помимо электроразрядного инициирования установка позволяла воздействовать на исследуемую смесь УФ излучением самодельных прямых импульсных ламп. Длительность УФ импульса составляла 3 мкс по уровню половины интенсивности. Длина области поглощения (усиления) в этом случае была равна 80 см для двух проходов. Выход возбужденных атомов при диссоциации УФ излучением известен для многих иодидов, поэтому сравнение сигналов при различных способах диссоциации позволяло сделать определенные выводы о работоспособности схемы регистрации.

В экспериментах использовались  $CF_3I$  и  $CH_3I$  производства ЗАО НПО «Пим-Инвест» без дополнительной очистки, а в качестве буферных газов – азот ОСЧ и гелий марки Б. Смеси нужного состава приготавливались в металлических баллонах и перед экспериментом напускались в полиэтиленовый мешок, откуда поступали в разрядную камеру. Использование мягкого мешка позволяло поддерживать на входе в ротаметр давление, равное атмосферному, для точного определения расхода.

К сожалению, несовершенство газовакуумной системы не позволяло вакуумировать ее до остаточных давлений, меньших 10 Па. Поэтому в предположении, что остаточное давление определяется натеканием атмосферного воздуха, парциальное давление остаточного кислорода составляет 2 Па. Как будет показано ниже, наличие кислорода оказывает влияние на скорость релаксации возбуждения атомов иода.

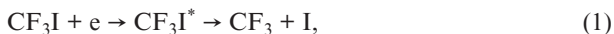
## 3. Кинетическая модель

При расчетах для смесей, содержащих  $CF_3I$ , использовалась созданная нами ранее нульмерная кинетическая модель импульсного разряда [10–12]. Учитывались следующие компоненты плазмы:  $e$ ,  $I$ ,  $I^*$ ,  $I_2$ ,  $I$ ,  $I^+$ ,  $CF_3I$ ,  $CF_3I(vib)$ ,  $CF_3I^*$ ,  $CF_3I^{**}$ ,  $CF_3I^{3*}$ ,  $CF_3I^{4*}$ ,  $CF_3I^{5*}$ ,  $CF_3$ ,  $CF_4$ ,  $CF_2I$ ,  $CF_2$ ,  $C_2F_6$ ,  $IO$ ,  $CF_3O$ ,  $CF_3O_2$ ,  $F$ ,  $COF_2$ ,  $C_2F_6O_3$ ,  $IF$ ,  $C_2F_6$ ,  $CF_3I^+$ ,  $CF_2I^+$ ,  $CF_2^+$ ,  $O_2$ ,  $O_2(vib)$ ,  $O_2(a^1\Delta_g)$ ,  $O_2(b^1\Sigma_g^+)$ ,  $O_2^*$ ,  $O_2^+$ ,  $O_4^+$ ,  $O$ ,  $O(^1D)$ ,  $O^-$ ,  $O^+$ ,  $O_3$ ,  $O_3^-$ ,  $He$ ,  $He^*$ ,  $He^{**}$ ,  $He^+$ ,  $He_2^+$ ,  $N_2$ ,  $N_2(vib)$ ,  $N_2^*$ ,  $N_2^{**}$ ,  $N_2^+$  и  $N_4^+$ . Здесь  $CF_3I^*$ ,  $CF_3I^{**}$ ,  $CF_3I^{3*}$ ,  $CF_3I^{4*}$  и  $CF_3I^{5*}$  – электронно-возбужденные преддиссоционные состояния молекулы  $CF_3I$  с порогами возбуждения 4.7, 7.2, 8.1, 9.0 и 9.8 эВ соответственно;  $He^*$  – низшее возбужденное электронное состояние гелия;  $He^{**}$  – объединенное электронное состояние с порогом возбуждения 20.5 эВ, включающее в себя все электронные состояния молекулы гелия за исключением низшего;  $N_2^*$  – низшее возбужденное электронное состояние азота  $A^3\Sigma_u^+$ ;  $N_2^{**}$  – объединенное электронное состояние с порогом возбуждения 7.35 эВ, включающее в себя все электронные состояния молекулы азота за исключением низшего; обозначение  $vib$  соответствует колебательно-возбужденной молекуле. Модель включает в себя совместное решение кинетических уравнений для компонент плазмы разряда и уравнение Больцмана для функции распределения электронов по энергиям (ФРЭЭ). Уравнение Больцмана для ФРЭЭ решается в двухчленном приближении. В этом уравнении учитываются упругие столкновения электронов с атомами и молекулами, возбуждение колебательных уровней в приближении эффективного колебательного уровня, возбуждение электронных состояний, диссоциация молекул электронным ударом, ионизация атомов и молекул, а также диссоциативное прилипание электронов к молекулам  $CF_3I$ .

Совместно с кинетическими уравнениями решались уравнения для внешней электрической цепи и уравнение для поступательной температуры газа. Моделируемая электрическая цепь состояла из разрядного промежутка и последовательно соединенных емкости и паразитной индуктивности (4.18 мкГн), величина которой определялась из сравнения расчетных и экспериментально измеренных значений тока и напряжения разряда. Считалось, что емкость вначале заряжалась до заданного напряжения  $U_0$ . В эксперименте после первого полупериода импульса тока происходило запирающее тиратрона. Это было учтено в

модели. Нагрев газа в разряде рассчитывался по уравнению теплового баланса, в которое были включены все известные каналы диссипации энергии электронов и возбужденных частиц.

Образование атомарного иода может происходить в следующих процессах диссоциации молекул CF<sub>3</sub>I электронным ударом:



где CF<sub>3</sub>I\* и CF<sub>3</sub>I\*\* – быстро распадающиеся преддиссоционные состояния электронно-возбужденной молекулы CF<sub>3</sub>I; I\* – возбужденное состояние атомарного иода <sup>2</sup>P<sub>1/2</sub>; I – основное состояние атомарного иода <sup>2</sup>P<sub>3/2</sub>. Процесс (1) имеет порог 4.7 эВ, а процесс (2) – 7.2 эВ. В наших работах [11, 12] предполагалось, что распад CF<sub>3</sub>I\*\* происходит с образованием I\*, т.е. по каналу (3б), а канал (3а) отсутствует. Этот вывод был сделан на основании измерений формы и энергии лазерного импульса КИЛ с генерацией атомов иода в импульсном тлеющем разряде. Отметим также, что в [11, 12] разряд осуществлялся в активной среде с высоким (50%) содержанием синглетного кислорода O<sub>2</sub>(<sup>1</sup>Δ<sub>g</sub>). Наличие синглетного кислорода снижает чувствительность лазерных характеристик к соотношению вкладов каналов (3а) и (3б). В нашей работе [10] концентрация атомов иода в импульсном разряде в смеси CF<sub>3</sub>I–He измерялась абсорбционной методикой, что исключает неопределенности, связанные с наличием синглетного кислорода O<sub>2</sub>(<sup>1</sup>Δ<sub>g</sub>) и с характеристиками резонатора. Доли атомов иода, образующихся по каналам (3а) и (3б), были определены заново. Они составили 0.3 и 0.7 соответственно.

Образование более высоких электронных состояний CF<sub>3</sub>I, возбуждаемых электронами плазмы и обозначенных в кинетической модели как CF<sub>3</sub>I<sup>3\*</sup>, CF<sub>3</sub>I<sup>4\*</sup>, CF<sub>3</sub>I<sup>5\*</sup>, с порогами 8.1, 9.0 и 9.8 эВ приводит к образованию радикалов CF<sub>2</sub>I, CF<sub>2</sub>, IF и атомов F [12].

#### 4. Результаты и их обсуждение

В экспериментах измерялся коэффициент поглощения на переходе атома иода <sup>2</sup>P<sub>3/2</sub>(F = 4) → <sup>2</sup>P<sub>1/2</sub>(F = 3) и по нему находилась величина [10]

$$\Delta N = \frac{[I]}{2} - [I^*], \quad (4)$$

где [I] и [I\*] – концентрации атомов I и I\*. Величины ΔN определялись сразу после окончания импульса тока разряда (ΔN<sub>0</sub>) и на больших временах (ΔN<sub>1</sub>), когда концентрация возбужденных атомов иода пренебрежимо мала. Для водородсодержащих иодидов CH<sub>3</sub>I и C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>I скорость релаксации возбужденных атомов иода на молекулах иодида велика, что в условиях эксперимента обеспечивало релаксацию за время порядка сотен микросекунд. Для фторсодержащих иодидов CF<sub>3</sub>I, i-C<sub>3</sub>F<sub>7</sub>I и C<sub>2</sub>F<sub>5</sub>I скорость релаксации возбужденного иода заметно меньше, поэтому его релаксация в эксперименте обеспечивалась добавлением в смесь молекулярного кислорода. Возбуждение

атомарного иода передавалось на нижний метастабильный электронный уровень молекулярного кислорода O<sub>2</sub>(a<sup>1</sup>Δ<sub>g</sub>). Считая, что на больших временах иод присутствует только в основном состоянии, получаем выражение

$$2\Delta N_1 = [I]_0 + [I^*]_0, \quad (5)$$

где [I]<sub>0</sub> и [I\*]<sub>0</sub> – концентрации невозбужденного и возбужденного иода в начальный момент времени. Определяя из (5) концентрацию [I\*]<sub>0</sub>, получаем долю возбужденных атомов иода, образующихся при диссоциации иодидов в разряде:

$$Y = \frac{[I^*]_0}{[I^*]_0 + [I]_0} = \frac{1}{3} - \frac{1}{3} \frac{\Delta N_0}{\Delta N_1}. \quad (6)$$

Для проверки работоспособности установки были проведены эксперименты с диссоциацией иодидов импульсным УФ излучением. На рис.1 представлены временные зависимости ΔN при фотодиссоциации иодидов в смесях CF<sub>3</sub>I: He = 1 : 4 и CH<sub>3</sub>I: He = 1 : 4 при давлении иодидов 56 и 64 Па соответственно. Константа скорости дезактивации возбужденного иода молекулами CH<sub>3</sub>I составляет ~2.76×10<sup>-13</sup> см<sup>3</sup>·с<sup>-1</sup> [14], что при указанном выше давлении иодида отвечает характерному времени релаксации возбужденного состояния ~240 мкс. Поэтому наблюдаемое максимальное значение ΔN соответствует практически полному отсутствию возбужденного состояния, т.е. концентрация атомов иода, образовавшихся в результате фотодиссоциации CH<sub>3</sub>I, равна 2ΔN<sub>max</sub> = 3×10<sup>13</sup> см<sup>-3</sup>. Экстраполируя зависимость ΔN(t) в точку t = 0, находим, что в начальный момент времени ΔN<sub>0</sub> = -(2.0–1.5)×10<sup>13</sup> см<sup>-3</sup>. С использованием значений, приведенных выше параметров получаем концентрацию возбужденных атомов иода в начальный момент времени (2.0 – 2.3)×10<sup>13</sup> см<sup>-3</sup>, что отвечает значению так называемого параметра branching ratio, равному 2.0 – 3.3, который определяется как отношение начальных концентраций возбужденных и невозбужденных атомов: [I\*]<sub>0</sub>/[I]<sub>0</sub> = Y(1 – Y). Отметим, что найденные значения Y попадают в диапазон данных, приводимых другими авторами (табл.1).

Получить аналогичные результаты для CF<sub>3</sub>I с использованием зависимости 2 на рис.1 нельзя, поскольку дезактивация атомов I\* молекулами CF<sub>3</sub>I происходит заметно медленнее. Соответствующая константа скорости

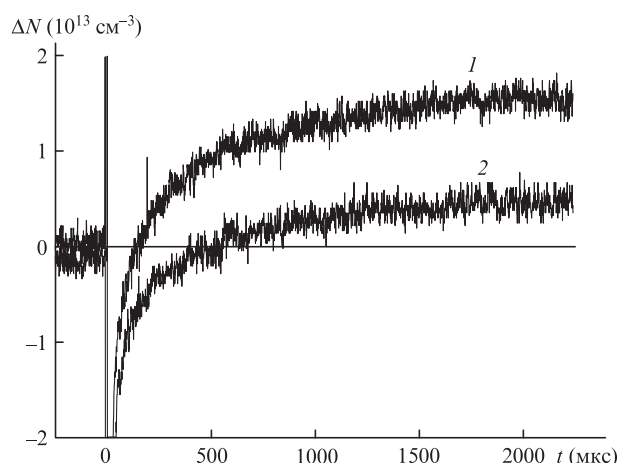


Рис.1. Зависимости от времени величины ΔN при фотолизе иодидов CH<sub>3</sub>I (1) и CF<sub>3</sub>I (2) в смесях с гелием.

Табл.1. Доли возбужденных атомов иода  $Y$ , образующихся при использовании разных способов диссоциации иодидов.

Иодид	Импульсный разряд	Электронный пучок	Фотолиз	Лазерный фотолиз
$CF_3I$	0.3 [10] 0.29 [н. р.] 0.45 [9]	0.79 [5]	0.91 [15] 0.9 [16]	–
$CH_3I$	0.29 [н. р.]	0.73 [5]	0.92 [15] 0.76 [17]	0.75 [18] 0.81 [19]
$i-C_3F_7I$	0.2 [н. р.] 0.95 [9]	0.76 [5]	0.90 [15]	–
$C_2F_5I$	0.31 [н. р.]	0.73 [5]	>0.98 [15]	–
$C_2H_5I$	0.31 [н. р.]	–	0.69 [15]	–

Примечание: [н. р.] – настоящая работа.

\*Небольшое отличие данных для  $CF_3I$  от нашей предыдущей работы [10] лежит в пределах погрешностей измерений.

составляет  $\sim 3.5 \times 10^{-17} \text{ см}^3 \cdot \text{с}^{-1}$  [14], поэтому в измеренное значение  $\Delta N$  вносят вклад и возбужденные атомы, концентрация которых в настоящем эксперименте была неизвестна.

Проведенные эксперименты по фотолизу иодидов показали возможность применения рассмотренной методики для измерения величины branching ratio для атомов иода при диссоциации иодидов. На рис.2 приведены для сравнения зависимости  $\Delta N(t)$  при фотодиссоциации и разрядной диссоциации  $CF_3I$ . Напомним, что в иодных лазерах генерация обычно происходит на самом сильном переходе между подуровнями сверхтонкой структуры атома иода  $^2P_{1/2}(F=3) \rightarrow ^2P_{3/2}(F=4)$ , для которого усиление имеет место в том случае, если величина branching ratio больше 0.5, что соответствует выходу возбужденного состояния  $Y > 1/3$ . Как следует из рис.2 при диссоциации  $CF_3I$  в разряде усиление на этом переходе не достигается, т.е.  $Y \leq 1/3$ .

Процедура измерения величин  $Y$  для различных иодидов состояла в следующем. Анализировались коэффициенты поглощения на указанном выше переходе иода с различным временным разрешением. Низкое разрешение (измерения на больших временах) позволяло найти полную концентрацию образовавшихся атомов иода, высокое разрешение (измерения на малых временах) – значение  $\Delta N$  сразу после инициирования.

На рис.3 приведены зависимости  $\Delta N(t)$  с различным временным разрешением и отмечены моменты времени

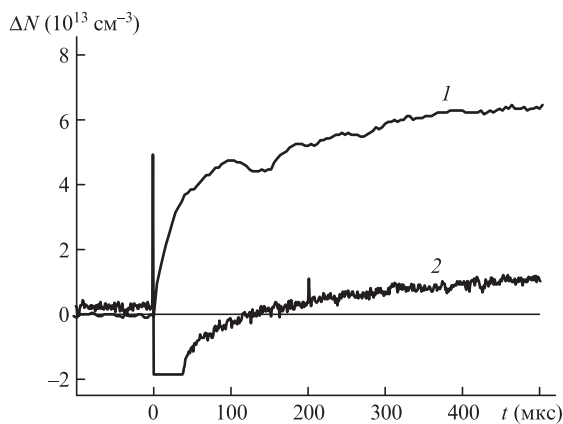


Рис.2. Зависимости от времени величины  $\Delta N$  при электроразрядной диссоциации (1) и фотодиссоциации (2)  $CH_3I$  в смесях  $CH_3I:He = 56:412$  Па и  $64:253$  Па соответственно.

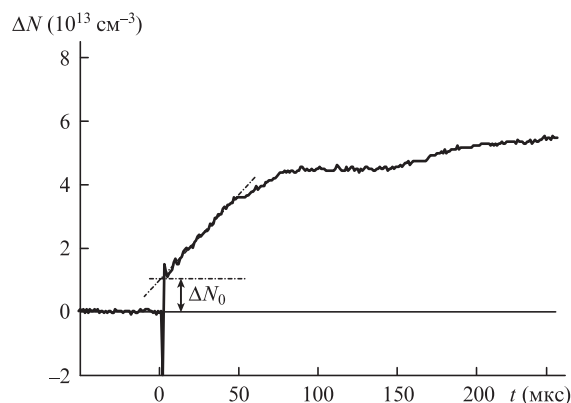
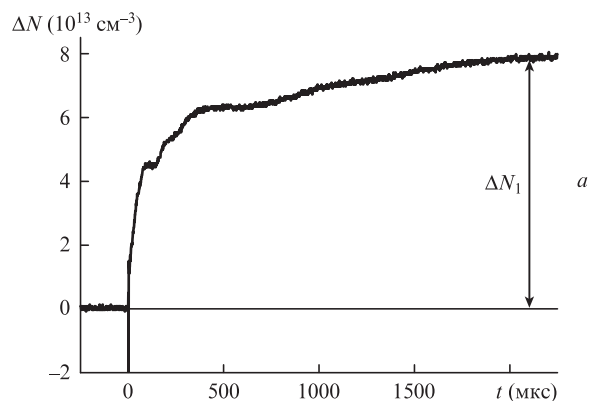


Рис.3. Зависимости от времени величины  $\Delta N$  при электроразрядной диссоциации иодидов в смеси  $CH_3I:He = 35:275$  Па, измеренные на большом (а) и малом (б) временных интервалах после инициирования. Напряжение разряда 22.3 кВ, удельный энерговклад  $90 \text{ Дж} \cdot \text{л}^{-1} \cdot \text{атм}^{-1}$ .

измерения  $\Delta N_0$  и  $\Delta N_1$  для смеси  $CH_3I-He$ . Как указывалось ранее, высокая скорость релаксации атомов  $I^*$  на молекулах  $CH_3I$ , приводит к тому, что на больших временах все атомы иода находятся в основном состоянии (рис.3,а). Определенные по формуле (6) величина  $Y$  и концентрации возбужденных атомов иода, образовавшихся при электроразрядной диссоциации  $CH_3I$ , приведены в табл.2. Измерения проводились в различных экспериментальных условиях, определявшихся возможностями экспериментальной установки.

Видно, что во всех экспериментах выход возбужденного состояния иода для  $CH_3I$  не превышал порогового для возникновения усиления значения. Величина выхода возбужденного иода оставалась одинаковой (в пределах погрешности измерений) для всех условий эксперимента и при усреднении по результатам большого числа экспериментов составила 0.29.

Как отмечалось выше, из-за малой эффективности дезактивации атомов  $I^*$  молекулами  $CF_3I$  для нахождения полной концентрации атомов иода, созданных разрядом,

Табл.2. Концентрации возбужденных атомов иода, образовавшихся при электроразрядной диссоциации  $CH_3I$  в смеси с  $He$ , и величины  $Y$  для смесей  $CH_3I:He = 1:7$  при различных давлениях  $p$  и напряжениях на емкости  $U_0$ .

$p$ (Па)	$U_0$ (кВ)	$[I^*]$ ( $10^{13} \text{ см}^{-3}$ )	$Y$
310	22.3	4.7	0.29
310	15.7	3.4	0.31
160	15.7	2.4	0.28

приходилось добавлять в исследуемую газовую смесь кислород, отличающийся высокой эффективностью дезактивации. Из рис.4 видно, что амплитуды  $\Delta N(t)$ , регистрируемые при добавлении кислорода и в его отсутствие, существенно различаются. При этом на малых временах (рис.4,б) добавленный кислород практически не влияет на величину  $\Delta N$ , наблюдаемую в начальный момент времени. В предположении, что в момент времени, соответствующий максимуму  $\Delta N$ , в смеси с кислородом все атомы не возбуждены, можно найти их концентрацию:  $[I] = 2\Delta N_1 = 11.2 \times 10^{13} \text{ см}^{-3}$  (рис.4,а). Из рис.4,б видно, что в начальный момент времени  $\Delta N_0 = 0.88 \times 10^{13} \text{ см}^{-3}$ , т.е. величина  $Y$  в данных экспериментальных условиях равна 0.28. В пределах погрешности эксперимента она не зависит от его условий. Усредненная по результатам большого числа экспериментов величина  $Y$  составила 0.29.

На рис.5 показаны доли  $\eta$  мощности разряда, расходуемой на образование атомарного иода в основном и в возбужденном состояниях (процессы (1), (3а) и (3б)), в зависимости от величины приведенного электрического поля  $E/N$  ( $E$  – напряженность поля разряда,  $N$  – полная концентрация частиц в смеси). Здесь же приведена зависимость  $Y(E/N)$ . Вертикальная линия показывает величину приведенного электрического поля в максимуме тока разряда, полученную с использованием кинетической модели. Зависимости  $Y(E/N)$  для смесей  $\text{CF}_3\text{I}$  с различным содержанием  $\text{He}$  представлены на рис.6. Расчеты баланса энергии электронов выполнены с помощью уравнения

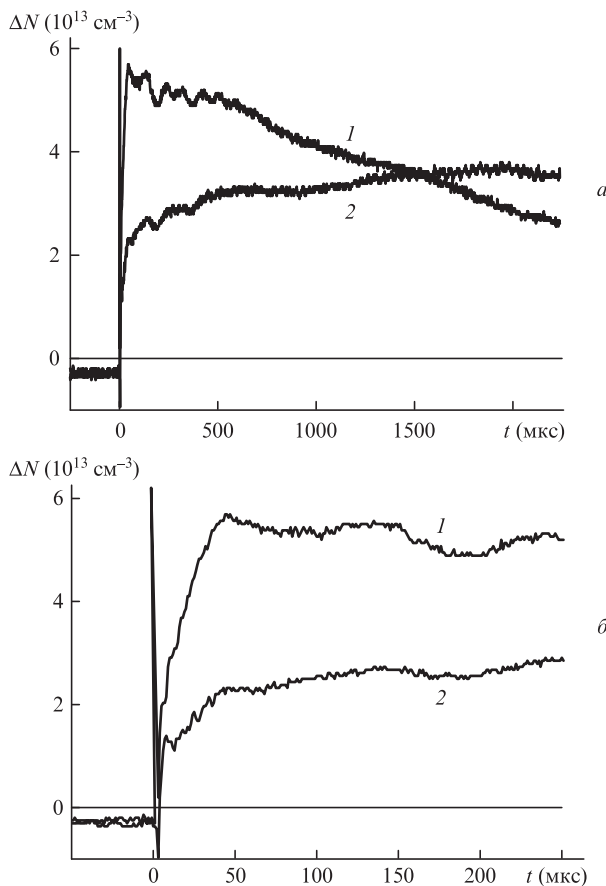


Рис.4. Зависимости от времени величины  $\Delta N$  при электроразрядной диссоциации иодида в смеси  $\text{CF}_3\text{I}:\text{He} = 39:286 \text{ Па}$  с добавкой  $\text{O}_2$  (27 Па) (1) и в его отсутствие (2), измеренные на большом (а) и малом (б) временных интервалах после инициирования. Напряжение разряда 22.3 кВ, удельный энерговклад  $90 \text{ Дж} \cdot \text{л}^{-1} \cdot \text{атм}^{-1}$ .

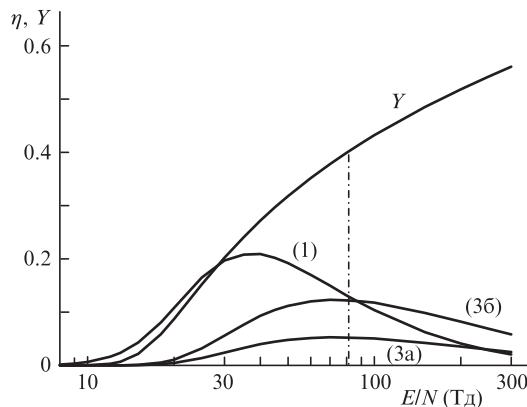


Рис.5. Рассчитанные доли  $\eta$  мощности разряда, идущей на образование  $I$  и  $I^*$  в процессах (1), (3а), (3б), и доля  $Y$  в зависимости от величины приведенного электрического поля  $E/N$  для смеси  $\text{CF}_3\text{I}:\text{He} = 1:7.5$ .

Больцмана для ФРЭЭ с сечениями рассеяния электронов на молекуле  $\text{CF}_3\text{I}$ , взятыми из работы [10]. Как следует из анализа результатов расчета по полной кинетической модели, увеличение содержания гелия приводит к уменьшению приведенного электрического поля в максимуме тока разряда, при этом величина  $Y$  составляет  $\sim 0.4$  и не зависит от концентрации буферного газа.

Ясно, что расчет доли возбужденного иода  $Y$  по балансу энергии электронов является приближенным. Получение более точных данных требует расчета по полной кинетической модели [10–12]. Рассчитанные с ее использованием зависимости  $Y(t)$  для чистой смеси  $\text{CF}_3\text{I}:\text{He} = 1:8$  и для смеси, содержащей примеси кислорода и воздуха, показаны на рис.7. При  $t \approx 0.1 \text{ мкс}$  доля возбужденного иода вначале растет и достигает максимального значения 0.37 до момента достижения максимума тока разряда. Это обусловлено тем, что в данный момент значение  $E/N$  больше, чем в максимуме тока разряда (который достигается при  $t = 0.4 \text{ мкс}$ ). В интервале 0.4 – 10 мкс доля возбужденного иода составляет 0.29, что меньше величины 0.4, оцененной по балансу энергии электронов и значению приведенного электрического поля в максимуме тока разряда. Для чистой смеси  $\text{CF}_3\text{I} - \text{He}$  при  $t = 0.4 - 30 \text{ мкс}$  доля возбужденного иода остается постоянной. Натекание воздуха или небольшого количества кислорода в кювету с газом вызывает небольшое уменьшение доли возбужденного иода на этих временах. Специальное добавление молекулярного кислорода (27 Па) приводит к уменьшению доли возбужденного иода при  $t = 0.4 -$

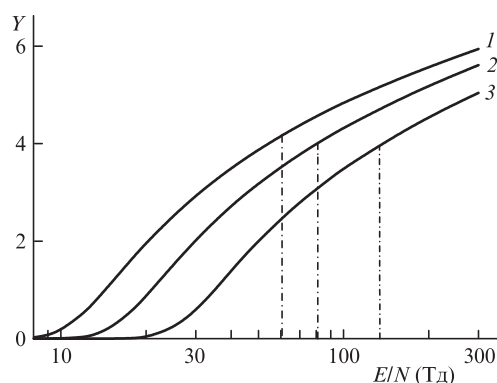


Рис.6. Рассчитанные зависимости  $Y(E/N)$  для смесей  $\text{CF}_3\text{I}:\text{He} = 1:15$  (1),  $1:7.5$  (2),  $1:3$  (3).

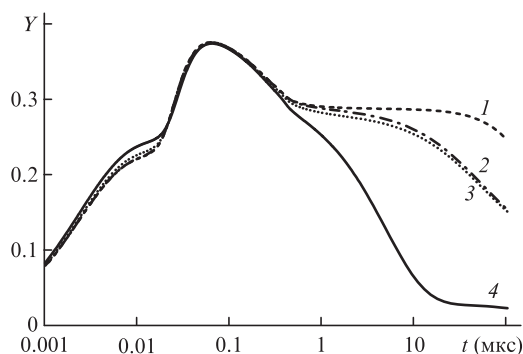


Рис.7. Рассчитанные зависимости  $Y(t)$  для чистой смеси  $\text{CF}_3\text{I}:\text{He} = 1:8$  (1) и для смеси, содержащей примеси кислорода (2 Па, 2; 27 Па, 4) и воздуха (6.5 Па, 3). Давление смеси  $p = 532$  Па,  $C = 6.8$  нФ,  $U_0 = 22.3$  кВ, удельный энерговклад  $40$  Дж  $\cdot$  л $^{-1}$   $\cdot$  атм $^{-1}$ .

30 мкс. Это происходит из-за передачи энергии электронно-возбужденного состояния иода электронно-возбужденному состоянию кислорода  $\text{O}_2(a^1\Delta_g)$ :



Рассчитанные зависимости  $\Delta N(t)$  для чистой смеси  $\text{CF}_3\text{I} - \text{He}$  и для смеси, содержащей примеси кислорода и воздуха, приведены на рис.8. Там же отмечены моменты времени измерения величин  $\Delta N_0$  и  $\Delta N_1$ . К сожалению, в экспериментальной установке происходит натекание атмосферного воздуха в зону разряда, поэтому представляет интерес оценить ошибку измерения, вызванную неопределенностью величины натекания. Такая оценка по зависимостям  $\Delta N(t)$ , представленным на рис.8, дает величину  $\sim 10\%$ .

По результатам проведенных измерений были определены следующие значения  $Y$ : 0.2 для  $i\text{-C}_3\text{F}_7\text{I}$  и 0.31 для  $\text{C}_2\text{F}_5\text{I}$  и  $\text{C}_2\text{H}_5\text{I}$ .

Расчеты с использованием нашей модели показали, что генерация, наблюдавшаяся в работе [7], происходит в результате возникновения инверсии населенностей рабочих уровней атома иода в процессе послеразрядной рекомбинации продуктов диссоциации иодидов. Атомы невозбужденного иода рекомбинируют быстрее, чем атомы возбужденного. В работе [9] было выполнено моделирование эксперимента [7]. В отличие от [9], где в кинетической модели суммарная доля возбужденного иода  $Y$  после окончания разряда была принята равной 0.45, в нашей модели она составила 0.3 (табл.1). Такое различие может быть объяснено тем, что в нашу кинетическую модель был включен процесс образования возбужденного атомарного иода при столкновении молекул  $\text{CF}_3\text{I}$  с электронно-возбужденными молекулами азота [11], а в [9] такой канал не учитывался.

В работе [9] по результатам моделирования генерации на атомарном иоде в смеси  $i\text{-C}_3\text{F}_7\text{I} - \text{He}$  в импульсном электрическом разряде [8] была определена доля возбужденного иода после окончания разряда  $Y = 0.95$ . Причины сильного отличия от наших результатов, которые дают  $Y = 0.2$  (табл.1), нами не установлены, но они могут быть связаны с заметно более высоким давлением (около 9 кПа), используемым в работе [8].

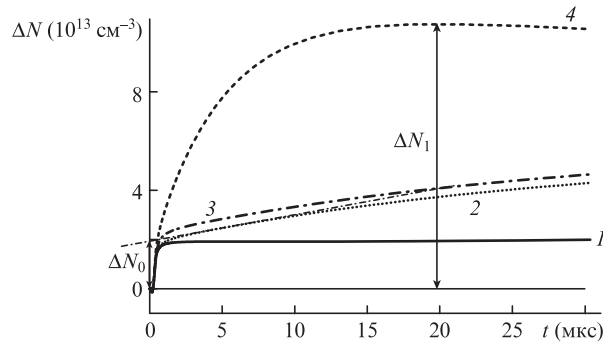


Рис.8. Рассчитанные зависимости от времени величины  $\Delta N$  для чистой смеси  $\text{CF}_3\text{I}:\text{He} = 1:8$  (1) и для смеси, содержащей примеси кислорода (2 Па, 2; 27 Па, 4) и воздуха (6.5 Па, 3). Давление смеси  $p = 532$  Па,  $C = 6.8$  нФ,  $U_0 = 22.3$  кВ.

## 5. Заключение

Проведенные эксперименты показывают, что доля возбужденных атомов иода  $Y$ , образующихся при диссоциации  $\text{CH}_3\text{I}$ ,  $\text{CF}_3\text{I}$ ,  $i\text{-C}_3\text{F}_7\text{I}$ ,  $\text{C}_2\text{F}_5\text{I}$  и  $\text{C}_2\text{H}_5\text{I}$  в самостоятельном импульсном разряде, не превышает 0.31, что несколько меньше требуемого для получения усиления на переходе  $^2\text{P}_{1/2}(F=3) \rightarrow ^2\text{P}_{3/2}(F=4)$  сверхтонкой структуры атома иода значения. Точность определения величины  $Y$  составляет  $\sim 10\%$ . Полученные значения  $Y$  для  $\text{CF}_3\text{I}$  хорошо согласуются с данными численного моделирования. Из результатов работы следует, что самостоятельный электрический разряд непригоден для прямой накачки иодного лазера на основе алкилиодидов и перфторалкилиодидов.

Работа выполнена при частичной финансовой поддержке гранта РФФИ № 16-02-00357-а.

- Бредерлов Г., Филл Э., Витте К. *Мощный иодный лазер* (М.: Энергоатомиздат, 1985).
- Хола К., Компа К. В кн.: *Химические лазеры* (М.: Мир, 1980).
- Basov N.G., Vyskubenko B.A., Zemskov E.M., Zuev V.S., Kazansky V.M., Katulin V.A., Kirillov G.A., Kormer S.B., Nosach O.Y., Sukharev S.A. *Proc. SPIE*, **3574**, 398 (1998). DOI:10.1117/12.334462.
- Зарубин П.В. *Квантовая электроника*, **32**, 1048 (2002) [*Quantum Electron.*, **32**, 1048 (2002)].
- Ramirez J.E., Bera R.K., Hanrahan R.J. *J. Appl. Phys.*, **57**, 2431 (1985).
- Залесский В.Ю., Иванов М.Г. *Квантовая электроника*, **2**, 277 (1975) [*Sov. J. Quantum Electron.*, **5**, 156 (1975)].
- Pleasant L.D., Weaver L.A. *Appl. Phys. Lett.*, **27**, 407 (1975).
- Wong M.C., Beverly R.E. III. *Opt. Commun.*, **20**, 19 (1977).
- Beverly R.E. III, Wong M.C. *Opt. Commun.*, **20**, 23 (1977).
- Вагин Н.П., Кочетов И.В., Напартович А.П., Юрьшев Н.Н. *Квантовая электроника*, **43**, 610 (2013) [*Quantum Electron.*, **43**, 610 (2013)].
- Kochetov I.V., Napartovich A.P., Vagin N.P., Yuryshv N.N. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **44**, 355204 (2011).
- Kochetov I.V., Napartovich A.P., Vagin N.P., Yuryshv N.N. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **42**, 055201 (2009).
- Вагин Н.П., Ионин А.А., Кочетов И.В., Напартович А.П., Синицын Д.В., Юрьшев Н.Н. *Физика плазмы*, **43**, 267 (2017).
- Gu Z.-N., Young A.T., Houston P.L. *Int. J. Chem. Kinet.*, **16**, 669 (1984).
- Donohue T., Wiesenfeld J.R. *J. Chem. Phys.*, **63**, 3130 (1975).
- Husain D., Wiesenfeld J.R. *Nature*, **213**, 1227 (1967).
- Palmer R.E., Padrick T.D. *J. Chem. Phys.*, **64**, 2051 (1976).
- Riley S.J., Wilson K.R. *Faraday Discuss. Chem. Soc.*, **53**, 132 (1972).
- Baughcum S.L., Leone S.R. *J. Chem. Phys.*, **72**, 6531 (1980).