

02; 04; 07

## ОБРАЗОВАНИЕ АКТИВНОЙ СРЕДЫ ИК ХИМИЧЕСКОГО ЛАЗЕРА ПРИ ГОРЕНИИ МЕЛКОДИСПЕРСНЫХ ЧАСТИЦ МЕТАЛЛА В ОКИСЛИТЕЛЕ

Б. Д. Бармашенко, В. А. Кочелан, Е. А. Шварчук, М. Т. Шпак

Показано, что образование активной среды ИК химических лазеров, возбуждаемых при электрическом взрыве проводников (ЭВП) в атмосфере окислителя, происходит при быстром распылении в процессе ЭВП капель и струй жидкого металла и последующем их горении в окислителе. Этот вывод сделан на основе анализа особенностей экспериментов по лазерной генерации при ЭВП и результатов проведенных нами дополнительных опытов по исследованию среды, образующейся при ЭВП Li в газах  $Cl_2$ ,  $N_2$ , Ar. Теоретически изучено образование инверсии и усиления ИК излучения при горении капель жидкого горючего в атмосфере окислителя.

### Введение

Для большинства действующих химических лазеров (ХЛ) активной средой служат газообразные реагирующие смеси. Другим возможным типом активной среды ХЛ является гетерофазная реагирующая среда, в которой один из реагентов распылен в виде мелкодисперсных частиц в атмосфере другого реагента. Ранее дисперсные среды (ДС) предлагалось использовать в  $CS_2-O_2$  [1] и HF [2, 3] лазерах. Применение реакций окисления металлов в качестве процессов накачки в ДС, испаряемых внешним светом, рассматривалось в [4]. В настоящей работе показано, что действие известного широкого класса ИК химических лазеров, возбуждаемых при электрическом взрыве проводников (ЭВП) в атмосфере окислителя [5], также основано на реакциях накачки в ДС. Образование активной среды лазеров [5] происходит при быстром распылении в процессе ЭВП капель и струй жидкого металла и последующем их горении в окислителе. Этот вывод сделан на основе анализа особенностей экспериментов [5] и результатов проведенных нами дополнительных опытов по исследованию среды, образующейся при ЭВП Li в газах  $Cl_2$ ,  $N_2$ , Ar. В работе также теоретически изучено образование инверсии и усиления ИК излучения в ДС при горении капель жидкого горючего в атмосфере окислителя. Результаты применены к ряду конкретных пар металлов и окислителей.

Дисперсные активные среды ХЛ представляют интерес по ряду причин. Применение ДС существенно расширяет круг веществ, пригодных для использования в ХЛ. ДС допускают рекордно быстрое перемешивание реагентов даже при высоких давлениях газовой фазы, в результате возможно образование ДС с высокой плотностью запасенной химической энергии. Для ДС достижим высокий темп химической накачки (средний по пространству), что особенно важно для ХЛ видимого диапазона [6]. В режиме генерации возможен принципиально новый характер горения газожидкостной мелкодисперсной среды [7].

### 1. Механизм образования активной среды химических лазеров при ЭВП в атмосфере окислителя

Лазерная генерация (спектральный диапазон 5—25 мкм) при ЭВП в атмосфере газов окислителей была получена и исследована более чем для 30 пар

металлов ( $M$ ) и окислителей ( $XY$ ) [5]. Рабочие молекулы, окислы металлов ( $MX$ ), образуются в быстрых газофазных реакциях



причем часть  $\eta$  энергии экзотермичности реакции  $Q$  расходуется на образование колебательно-возбужденных молекул  $MX^+$  ( $\eta=0.5-0.9$ ). Специальными опытами была доказана химическая природа накачки  $MX$  в лазерах [6]. Для этих лазеров характерны следующие интересные особенности. ЭВП, установленного на расстоянии порядка 1 см от оптической оси резонатора, приводит к генерации через очень короткое время  $t_s$  (для  $M=Li, Mg, Al$  и т. д.,  $XY=F_2, O_2, NF_3$ ,  $t_s=1-2$  мкс), т. е. горючее  $M$  заполняет резонатор со скоростью  $u_s > 10^6$  см/с (I).<sup>1</sup> Причем успевает произойти перемешивание реагентов  $M$  и  $XY$  до молекулярного уровня (длительность генерации  $t_r=0.5-3$  мкс), что свидетельствует о сильно неоднородной по пространству подаче металла  $M$  (II). Величины  $t_s$  и  $t_r$  практически не изменяются при вариации давления окислителя  $P_{XY}$  в широких пределах (20—200 Тор) (III). В то же время для других типов ХЛ [8], использующих смешивание реагентов в резонаторе, характерны значительно большие времена приготовления активной среды и их существенная зависимость от давления  $P$  (допустимы  $P < 10$  Тор). Указанная особенность лазеров [5] до сих пор не получила объяснения.

При давлениях, характерных для [5], может существовать лишь частичная инверсия колебательно-вращательных уровней  $MX$ , причем  $t_r < \tau_{VT}$ , где  $\tau_{VT}$  — время  $VT$ -релаксации  $MX^+$  (IV). В реакционных зонах температура  $T \approx T_f = (1-\eta)Q/c_p$  ( $c_p$  — теплоемкость газа). Обычно  $(1-\eta)Q \geq 20$  ккал/моль, т. е.  $T_f \geq 2-4$  кК. Но для всех  $MX$   $\tau_{VT}(T_f) \ll t_r$ . Большие (средние по пространству)  $\tau_{VT}$  возможны лишь, если  $MX^+$  успевают покинуть горячие зоны. Для этого пространственные масштабы  $r$  областей с горючим должны быть малы (V):  $r \ll \sqrt{D\tau_{VT}(T_s)}$  ( $D$  — коэффициент диффузии). Для  $D = 1-10$  см<sup>2</sup>/с  $\tau_{VT}(T_f) \ll 10^{-7}$  с получается  $r < 3-10$  мкм.

В условиях экспериментов [5] вкладываемая при ЭВП энергия достаточна лишь для частичного испарения металла. В начальный момент образуется парожидкостная смесь (коллоид) [9] с  $T=T_0=2-4$  кК и давлением в десятки атмосфер. Максимальная скорость расширения облачков и струй пара на стадии, где давление пара металла сравнимо с давлением окислителя, ограничена величиной  $u_n^m = \sqrt{2\gamma_M k T_0 / (\gamma_M - 1) m_M}$  ( $\gamma_M$  — показатель адиабаты пара  $M$ ,  $m_M$  — атомная масса  $M$ ). Числовое значение  $u_n^m$  всегда меньше  $10^6$  см/с. Однако известно, что при ЭВП высокотемпературный коллоид разлетается с начальной скоростью  $u_k > 10^6$  см/с (см. ссылки в [5]). Некоторая доля жидкого металла в виде капель приобретает скорость  $u \approx u_k$  и, опережая основную массу расширяющегося металла, по инерции пролетает значительные расстояния, прежде чем затормозится в окислителе. Летящие капли в соответствии с большой  $T_0$  являются сильно перегретыми и испаряются; образуются следы из паров металла. Большие скорости капель, образование следов, горение капель и металла в следах объясняют наблюдаемые особенности I—III и соответствуют условиям IV—V, необходимым для образования инверсии.

Нами были проведены дополнительные эксперименты с ЭВП из  $Li$  в газах  $Cl_2, N_2, Ar$  в режимах, характерных для [5]. Введение в объем специальных вкладышей позволило установить, что при ЭВП действительно разбрызгиваются капли  $Li$  радиусом  $R=1-10$  мкм, они пролетают расстояние 1—2 см. Капли наблюдались лишь на поверхностях вкладышей, обращенных к проводнику, на боковых поверхностях они отсутствовали, т. е. их появление не связано с конденсацией металла после ЭВП. Плотность капель уменьшалась при удалении вкладыша от проводника.

Были исследованы потери света с различными длинами волн ( $\lambda=0.63, 1.15, 3.69, 10.6$  мкм) в средах, образующихся при ЭВП в  $Ar, N_2, Cl_2$ . Для этого лазерный луч диаметром 0.5 см пропускаться через среду параллельно

<sup>1</sup> Цифрами I, II, ... будем отмечать качественные положения, позволяющие установить механизм образования активной среды.

проводнику на расстоянии  $\sim 1$  см. Световые потери не были зафиксированы на временах 3—5 мкс после ЭВП, т. е. на временах, сравнимых с  $t_3 + t_r$  из [5], потери света отсутствовали (VI). Для больших времен потери возникали в  $N_2$  и  $Cl_2$  с подобной для всех  $\lambda$  кинетикой (рис. 1), для Ag потери практически отсутствовали. Анализ показал, что потери для  $t > 5$  мкс связаны с неоднородностью среды, вызванной очаговым характером сгорания Li в  $N_2$  и  $Cl_2$ . Такое горение приводит к большим градиентам температуры, давления, к движению газа и пр.

Для подтверждения последнего вывода оптические неоднородности, образующиеся при ЭВП, были исследованы теньвым методом (метод ножа в фокусе) [10]. Приведены шлирен-фотографии невозмущенной среды (рис. 2, а) и фотографии, выполненные через различные времена после начала импульса тока (рис. 2, б, в). Возмущения плотности среды идентифицируются по профилям почернения фотослоя и по изгибу интерференционных полос. На рис. 2, б, в видна сильно неоднородная область, прилегающая к первоначальному положению проводника и отделенная резкой границей. В ней сосредоточена большая часть паров M, реагирующих с  $Cl_2$  и расширяющихся со сверхзвуковыми скоростями  $\sim u_n^m$ . Для  $t \leq 2$  мкс ( $\approx t_3$ ) размер неоднородной области не превышает 3—5 мм (рис. 2, б), для  $t > 5$  мкс ( $\approx t_3 + t_r$ ) эта область расширяется, достигая размера  $\sim 1$  см (рис. 2, в). Значительные потери света, обнаруженные при зондировании среды лазером, обусловлены перекрытием зондирующего луча областью сильных неоднородностей.

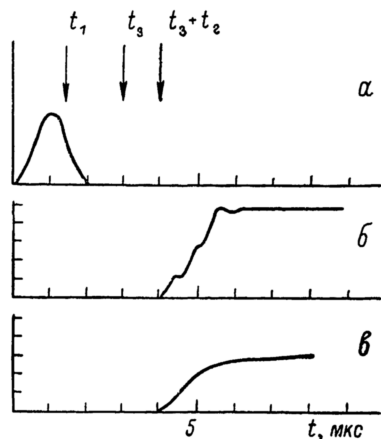


Рис. 1.

а — характерный импульс тока при ЭВП из Li в  $Cl_2$  и  $N_2$ ,  $U=20$  кВ,  $t_1$  — начало разлета проводника; б — потери света с  $\lambda=0.63$  мкм,  $P_{Cl_2} = 12$  Тор; в —  $P_{N_2} = 20$  Тор. Цена деления вдоль оси ординат 20 %.

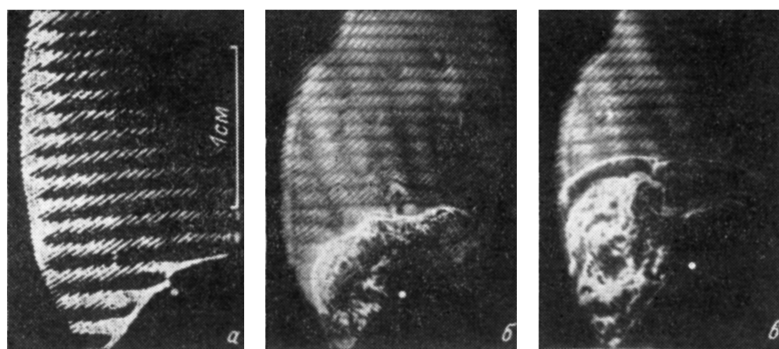


Рис. 2. Шлирен-фотографии ЭВП Li в  $Cl_2$ ,  $P_{Cl_2} = 76$  Тор,  $U=16$  кВ.

а — невозмущенная среда, б — через 2 мкс после начала импульса тока, в — через 4.6 мкс после начала импульса тока. Плоскость аккомодации теневого прибора удалена от ближнего конца проволоки на 7 см. Перемежающиеся интерференционные полосы равной толщины образованы интерференционным фильтром, помещенным между взрывной камерой и теньвым прибором. Белая точка — первоначальное положение проводника.

Особенности расширения при ЭВП неоднородной области позволяют понять результаты экспериментов [5]. На временах  $t \leq t_3$  оптически неоднородная область располагалась вне резонатора или захватывала лишь малую его часть. Она не оказывала влияния на генерацию. Для времен  $t \geq t_3 + t_r$  неоднородная среда частично заполняла резонатор, что приводило к срыву генерации. Этот вывод согласуется с установленным в [5] фактом слабой зависимости длительности генерации  $t_r$  от давления вплоть до  $P_{XY} \approx 1$  атм. Отсюда можно получить оценку для  $\tau_{VT}$  снизу. Действительно,  $\tau_{VT} > t_r$ , так как в противном случае

срыв генерации был бы обусловлен процессами  $VT$ -релаксации  $MX^+$  и  $t_r$  уменьшалось бы с ростом  $P_{XY}$ . Отсюда получаем  $P_{XY} \tau_{VT} > 1$  мкс·атм.

Перед границей сильно неоднородной области на рис. 2 расположена слабо-возмущенная зона протяженностью  $\sim 1$  см. Сравнивая рис. 2, *a* и *b*, можно заметить в этой зоне слабые оптические неоднородности, вытянутые в виде темных «языков» (VII). Они отсутствовали при ЭВП Li, изолированного от объема, заполненного  $Cl_2$ , кварцевой стенкой. Поэтому они не могут быть обусловлены воздействием излучения от взрыва на  $Cl_2$ . Неоднородности отсутствуют и при ЭВП из Li в Ar. Можно заключить, что причиной возникновения оптических неоднородностей в слабовозмущенной зоне является химическая реакция окисления Li, проникшего в  $Cl_2$  на глубину  $\sim 1$  см. Как уже указывалось, столь глубокое проникновение возможно лишь при быстром распылении капели Li в  $Cl_2$ .

Таким образом, перечисленные особенности (I—VII) лазеров, использующих ЭВП в окислителе, объясняются распылением с большими скоростями капель жидкого металла и последующим его окислением в газовой фазе. Образующаяся гетерофазная активная лазерная среда является оптически однородной и имеет поперечную протяженность более 1 см.

## 2. Модель образования инверсии и усиления ИК излучения при горении ДС

Исследуем простейшую модель гетерофазной активной лазерной среды, состоящей из неподвижных капель металла, горящих в атмосфере газообразного окислителя. Рассматривается случай самоподдерживающегося горения капели, что соответствует варианту чисто химического лазера. Модель позволяет проанализировать общие закономерности образования инверсии и усиления излучения в ДС, не зависящие от конкретного способа создания ДС.

Для случая создания ДС при ЭВП рассматриваемая модель описывает вклад в усиление от затормозившихся капель. Оценки вклада в усиление от следов за движущимися каплями приведены в разделе 4.

Горение в окислителе капель металлов Li, Mg, Al и др., обладающих низкой теплотой испарения, протекает следующим образом [11]. Каждая из капель окружена расположенной в газовой фазе зоной химической реакции. В эту зону изнутри поступают пары металла  $M$ , снаружи — окислитель  $XY$ . Испарение металла поддерживается подводом тепла из реакционной зоны к капле. В зоне химической реакции протекает процесс (I), приводящий к колебательному возбуждению молекул — продуктов реакции  $MX$ . Последующие процессы  $VV$ -обмена,  $VT$ -релаксации в газе и на поверхности металла и газотранспортные процессы могут привести к формированию вокруг каждой капли области с инверсной заселенностью колебательно-вращательных уровней  $MX$ . Для расчета инверсии и усиления излучения в среде предположим, что процессы  $VV$ -обмена навязывают неравновесное бальмановское распределение молекул  $MX$  по колебательным уровням. В этом случае возможно образование частичной инверсии для  $P$ -ветви колебательно-вращательного спектра  $MX$ .

Коэффициент усиления (поглощения) излучения  $\bar{a}$  в пространственно неоднородной среде, какой является ДС, можно выразить через локальное значение коэффициента усиления  $\alpha_l$  и потери света на каплях  $\gamma_k$  [6]

$$\bar{a} = \bar{a}_r - \gamma_k, \quad \bar{a}_r = \sum_l [K_l] \int \alpha_l dV, \quad \gamma_k = \sum_l a_l [K_l]. \quad (2)$$

Здесь  $[K_l]$  — концентрация капель радиуса  $R_l$ , суммы по  $l$  учитывают капли различных размеров. Коэффициенты  $a_l$  описывают потери излучения как на поглощение, так и на рассеяние, они зависят от длины волны  $\lambda$ , размеров и свойств капель и т. п.

Для колебательно-вращательного перехода  $v, j-1 \rightarrow v-1, j$  ( $v, j$  — нумеруют колебательные и вращательные состояния  $MX$ ) локальное значение коэф-

коэффициента усиления  $\alpha_{\nu}$  удобно выразить через неравновесный запас колебательных квантов, приходящихся на одну молекулу  $MX$ ,  $\varepsilon_{\nu}$

$$\alpha_{\nu} = \sigma_{\nu}^j \frac{(2j-1)\theta_r}{T} e^{-\frac{j(j+1)\theta_r}{T}} \frac{\varepsilon_{\nu}(1-\beta) - \beta}{\varepsilon_{\nu}(1+\varepsilon_{\nu})} \left( \frac{\varepsilon_{\nu}}{1+\varepsilon_{\nu}} \right)^{\nu} [MX]. \quad (3)$$

Здесь  $\sigma_{\nu}^j$  — сечение усиления в центре линии  $\nu$ ,  $j-1 \rightarrow \nu-1$ ,  $j$ ;  $\theta_r$  — характеристическая вращательная температура  $MX$ ;  $T$  — локальная температура газа;  $\beta \equiv \exp(-2j\theta_r/T)$ .

Пространственно-временные зависимости  $T$ ,  $\varepsilon_{\nu}$ ,  $[MX]$ , необходимые для вычисления  $\alpha_{\nu}$ , можно найти, решая уравнения переноса [12] в окрестности каждой капли. Их удобно записать для величин

$$y_z = \frac{[Z]}{\rho} (Z = M, XY, MX, \dots), \quad y_T = \frac{c_p T}{Q(1-\eta)}, \quad e_{\nu} = k\theta_{\nu} \varepsilon_{\nu} [MX]/\rho,$$

где  $\rho$  — плотность,  $c_p$  и  $e_{\nu}$  — теплоемкость и колебательная энергия единицы массы газа;  $\theta_{\nu}$  — характеристическая колебательная температура  $MX$ .

Уравнения для  $y_z$  и  $y_T$  имеют вид

$$\hat{L}y_M = \hat{L}y_{XY} = -\hat{L}y_T = -W, \\ \hat{L} \equiv \rho \frac{\partial}{\partial t} + \frac{\dot{m}}{4\pi r^2} \frac{\partial}{\partial r} - \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \rho D r^2 \frac{\partial}{\partial r}. \quad (4)$$

Здесь  $W = k[M][XY]$  — скорость реакции (1),  $r$  — расстояние от центра капли,  $\dot{m}$  — массовая скорость испарения капли. Принято, что коэффициенты диффузии всех компонентов одинаковы и равны  $D$ , число Льюиса равно 1. Зависимости  $e_{\nu}(r, t)$  определяются уравнением, учитывающим  $VT$ -релаксацию

$$\hat{L}e_{\nu} = -\eta QW - \frac{\rho e_{\nu}}{\tau_{VT}}, \quad \tau_{VT} = \left( \sum_Z k_{VT}^Z [Z] \right)^{-1}, \quad (5)$$

где  $k_{VT}^Z$  — константа скорости  $VT$ -релаксации на компоненте  $Z$ .

Граничные условия к (4), (5) на поверхности капли

$$\left. \begin{aligned} j_M = \frac{\dot{m}_I}{4\pi R_I^2 m_M}, \quad j_{XY} = j_{MX} = 0 \\ \rho D \left( \frac{\partial y_T}{\partial r} (1-\eta)Q + \frac{\partial e_{\nu}}{\partial r} \right) = \frac{\dot{m}_I}{m_M} \frac{H}{4\pi R_I^2}, \quad e_{\nu} = 0 \end{aligned} \right\} r = R_I. \quad (6)$$

Здесь  $j_z = \frac{\dot{m}}{4\pi r^2} y_z - \rho D \frac{\partial y_z}{\partial r}$  — плотность потока компоненты  $Z$ ,  $m_z$  — масса молекулы  $Z$ ,  $H$  — теплота испарения атома металла  $M$ . Последнее равенство в (6) означает, что поверхность металла полностью дезактивирует  $MX^+$ . Для  $r \rightarrow \infty$  и при  $t=0$  потребуем

$$y_M = y_{MX} = e_{\nu} = 0, \quad y_{XY} = y_{XY}^{(\infty)}, \quad y_T = y_T^{(\infty)}. \quad (7)$$

При записи (7) предполагается, что окислитель находится в избытке, нестационарная стадия разогрева капли не рассматривается.

В соответствии с результатами раздела 1 наиболее актуальны случаи

$$R_I \ll \sqrt{D\tau_{VT}(T_f)} \quad (8)$$

(масштабы областей, содержащих  $M$ , малы:  $r \sim R$ ,  $MX^+$  успевают покинуть эти горячие области с  $T \sim T_f$ ). При условии (8) система (4)–(7) допускает аналитическое решение, которое находится в два этапа: решение «внутренней» задачи в областях, прилегающих к капле ( $r \geq R_I$ ), из которого определяются потоки частиц  $MX$  и колебательной энергии в холодную зону, где возможно образование инверсии; решение «внешней» задачи ( $r \geq R_I$ ) в холодной зоне.

Внутренняя задача. Будем рассматривать квазистационарное горение капле на временах  $t \gg R_l^2/D$ , тогда в (4), (5) можно опустить члены с  $\partial/\partial t$ . Согласно (8), не существенны также члены, содержащие  $\tau_{VT}$ . Из решения внутренней задачи в пределе узкой (по сравнению с масштабом  $r \sim R_l$ ) зоны реакции для  $\dot{m}_l$  и плотностей потоков  $MX$  и  $e_v$  во внешнюю область получается

$$\dot{m}_l = 4\pi r D R_l \ln \left[ 1 + \frac{Q y_{XY}^{(\infty)} - c_p (T_0 - T_\infty)}{H} m_M \right], \quad (9)$$

$$j_{MX}^{(i)} = \frac{1}{\eta \kappa Q} j_{e_v}^{(i)} = \frac{\dot{m}}{4\pi r^2 m_M}, \quad (10)$$

$$x = \frac{(Q - H) y_{XY}^{(\infty)} - C_p (T_0 - T_\infty)}{Q y_{XY}^{(\infty)} - c_p (T_0 - T_\infty)}. \quad (11)$$

Здесь  $T_0$  — температура капли, приближенно равная температуре кипения металла  $M$  при давлении  $P_{XY}$ . Из (10) видно, что во внешнюю область поступает доля  $x$  колебательной энергии  $\eta Q$ , выделяемой в реакции. Остальная энергия теряется при дезактивации  $MX^+$  на поверхности капле.

Внешняя задача. В области  $r \gg R_l$  следует решать нестационарные уравнения (4), (5) с учетом  $VT$ -релаксации. В этой области можно считать  $D$ ,  $\rho$ ,  $\tau_{VT} \approx \text{const}$ ,  $T \approx T_\infty$  (критерий последнего см. ниже) и пренебречь процессом конвекции. Для  $y_{MX}$  и  $e_v$  граничными условиями для внешней задачи служат равенства (10), для других переменных начальные и граничные условия даются в (7). Приведем решения для  $y_{MX}$  и  $e_v$

$$y_{MX} = \frac{\dot{m}}{4\pi r D m_M \sqrt{D \tau_{VT} (T_\infty)}} \xi \left( 1 - \Phi \left( \frac{\xi}{2\sqrt{\tau}} \right) \right), \quad e_v = x \eta Q y_{MX} e(\xi, \tau),$$

$$e(\xi, \tau) = \frac{e^{-\xi} \left[ 1 - \Phi \left( \frac{\xi}{2\sqrt{\tau}} - \sqrt{\tau} \right) \right] + e^{\xi} \left[ 1 - \Phi \left( \frac{\xi}{2\sqrt{\tau}} + \sqrt{\tau} \right) \right]}{2 \left[ 1 - \Phi \left( \xi/2\sqrt{\tau} \right) \right]}. \quad (12)$$

Здесь  $\xi = r/\sqrt{D \tau_{VT} (T_\infty)}$ ,  $\tau = t_j' \tau_{VT} (T_\infty)$ ,  $\Phi(x) = 2/\sqrt{\pi} \int_0^x e^{-t^2} dt$ .

Формулы (3), (12) при выполнении (8) позволяют рассчитать  $\bar{\alpha}_r$ , так как основной вклад в интеграл из (2) вносит внешняя область. Упростим (3), воспользовавшись неравенствами  $e_v \gg 1$  и  $j\theta_r/T_\infty \ll 1$ , характерными для рассмотренных ниже конкретных реакций

$$\alpha_r \cong \sigma_v^j e^{-j^2 \theta_r / T} \frac{2j\theta_r}{T} \frac{e_v}{\varepsilon_v^2} - 1 e^{-\sigma/\varepsilon_v} [MX]. \quad (3')$$

В результате из (3'), (2) и (12) для пространственно усредненного коэффициента усиления  $\bar{\alpha}_r$  получаем

$$\bar{\alpha}_r = \frac{2\sigma_0 j \theta_r \tau_{VT} (T_\infty) k \theta_v}{x \eta Q T_\infty} \left( \sum_l \frac{\dot{m}_l}{m_M} [K_l] \right) e^{-j^2 \theta_r / T_\infty} \mathcal{J}(\tau, w, \mathcal{K}),$$

$$\mathcal{J}(\tau, w, \mathcal{K}) \equiv w \int_0^\infty d\xi \frac{\mathcal{K} \varepsilon - 1}{\varepsilon^2} e^{-w|\varepsilon} \left[ 1 - \Phi \left( \frac{\xi}{2\sqrt{\tau}} \right) \right]. \quad (13)$$

Здесь положено  $w \equiv vk \theta_v / x \eta Q$ ,  $\mathcal{K} \equiv \frac{2x \eta Q \theta_r j}{k \theta_v T_\infty}$ ,  $\sigma_v^j = r \sigma_0^j$ .

Проанализируем полученные результаты. Поскольку в (12), (13) входит величина  $\varepsilon(\xi, \tau) \ll 1$ , то существует необходимое условие возникновения ин-

версии ( $\bar{\alpha}_r > 0$ ):  $\mathcal{K}(j) > 1$ . Отсюда следует, что инверсия реализуется для вращательных уровней

$$j > j^* \equiv \frac{k\theta_V T_\infty}{2\pi\eta Q\theta_r}. \quad (14)$$

Это условие только множителем  $\kappa^{-1}$  отличается от условия образования частичной инверсии в случае гомогенной реакции. Отметим, что (14) не зависит от радиуса капель  $R_l$ . Эта величина входит лишь в  $\dot{m}_l$  (см. (9)). Ниже везде будем считать каплю одинаковой  $R_l \equiv R$ ,  $\dot{m}_l \equiv \dot{m}$ ,  $[K_l] \equiv [K]$ .

Наиболее существенная временная зависимость  $\bar{\alpha}_r$  определяется функцией  $\mathcal{J}(\tau)$  из (13), представленной на рис. 3 для фиксированного  $\mathcal{K}$  и различных  $w$ . Видно, что  $\mathcal{J}(\tau)$  имеет максимум при некотором  $\tau = \tau_m$ , зависящий от  $w$  и  $\mathcal{K}$ . Можно поставить вопрос об определении верхней границы  $\bar{\alpha}_r$  как функции  $\tau$ ,

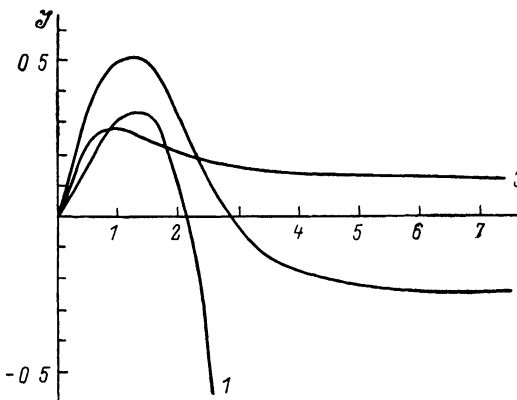


Рис. 3. Зависимости  $\mathcal{J}(\tau)$  для  $\mathcal{K}=3$ .  
 $w$ : 1 — 0.2, 2 — 0.6, 3 — 1.6.

$w$  и  $\mathcal{K}$ . Оказывается, что  $\text{Supr } \bar{\alpha}_r$  зависит лишь от одного параметра  $E \equiv (k\theta_V)^2 T_\infty / 4Q^2 \eta^2 \kappa^2 \theta_r$ ,

$$\text{Supr } \bar{\alpha}_r = \alpha_0 \frac{\dot{m}\tau_{VT}}{m_M} \left( \frac{k\theta_V}{Q\eta_V \kappa} \right)^2 F_m(E) [K] \equiv \Sigma [K], \quad (15)$$

функция  $F_m(E)$  приведена на рис. 4, а. Там же приведены значения  $\tau_m, w_m, \mathcal{K}_m$ , при которых достигается (15). Поясним, как пользоваться рис. 4, а. Для выбранной реакции накачки (I) вычисляется величина  $E$ , по этой величине и рис. 4, а находятся  $w_m$  и  $\mathcal{K}_m$  и определяются уровни  $v_m, j_m$ , для которых достигается максимальное усиление, а также соответствующий момент времени  $\tau_m$ , величина  $F_m(E)$  и, наконец,  $\text{Supr } \bar{\alpha}_r$ .

Из рис. 3 видно, что для невысоких  $w$  (низкие колебательные уровни  $v$ ) инверсия существует лишь на временах  $t \leq \tau_{VT}$ . Однако для  $w > w^*(\mathcal{K})$  (высокие  $v$ ) инверсия сохраняется при  $t \gg \tau_{VT}$ .  $w^*(\mathcal{K})$  определяется условием  $\mathcal{J}(\infty, w^*, \mathcal{K}) = 0$ . Зависимость  $w^*(\mathcal{K})$  приведена на рис. 5. В предельных случаях для  $w^*(\mathcal{K})$  получается  $\mathcal{K} \gg 1, w^* \approx 1/\mathcal{K}, \mathcal{K} - 1 \ll 1, w^* \approx 2/(\mathcal{K} - 1)$ . Можно рассчитать верхний достижимый предел  $\bar{\alpha}_r$ , реализующийся на больших временах ( $t \gg \tau_{VT}$ ). Для этого достаточно в (15) вместо  $F_m(E)$  использовать зависимость  $F_\infty(E)$ , представленную на рис. 4, б. Там же приведены значения  $w_m^{(\infty)}$  и  $\mathcal{K}_m^{(\infty)}$ , при которых  $\bar{\alpha}_r$  максимально. Видно, что для фиксированных  $E$  значение  $F_\infty$  ниже, а  $w_m^{(\infty)}, \mathcal{K}_m^{(\infty)}$  выше, чем соответствующие характеристики для времен  $t < \tau_{VT}$ . Возможность поддержания частичной инверсии  $MX^+$  на временах  $t \gg \tau_{VT}$  является важной специфической особенностью реагирующих ДС (в ХЛ с гомогенной накачкой время существования инверсии меньше или порядка  $\tau_{VT}$ ). Для ДС время существования инверсии сверху ограничено временем сгорания капель.

При наличии инверсии для усиления требуется удовлетворить условию  $\bar{\alpha}_r > \gamma_r$  (см. (2)). Для оценок положим  $a_i \equiv a = \pi R^2 f$ , тогда указанное условие можно представить в виде ограничения на  $R$  и давление окислителя  $P_{XY}$

$$RP_{XY}^2 < (RP_{XY}^2)_c \equiv \frac{4\sigma^* \tau_{VT}^* \rho D (k\theta_V)^2}{m_M \lambda^2 \eta^2 Q^2 f} F_m(E) \ln \left[ 1 + \frac{Qy_{XY}^{(\infty)} - c_p(T_0 - T_\infty)}{H} m_M \right], \quad (16)$$

где  $\sigma^*$  и  $\tau_{VT}^*$  — значения  $\sigma_0$  и  $\tau_{VT}$  при  $P_{XY} = 1$  атм. Аналогичный критерий существует для сохранения усиления на длительных временах  $t > \tau_{VT}$ :  $RP_{XY}^2 < (RP_{XY}^2)_c \equiv (RP_{XY}^2)_c \frac{F_\infty(E)}{F_m(E)}$ .

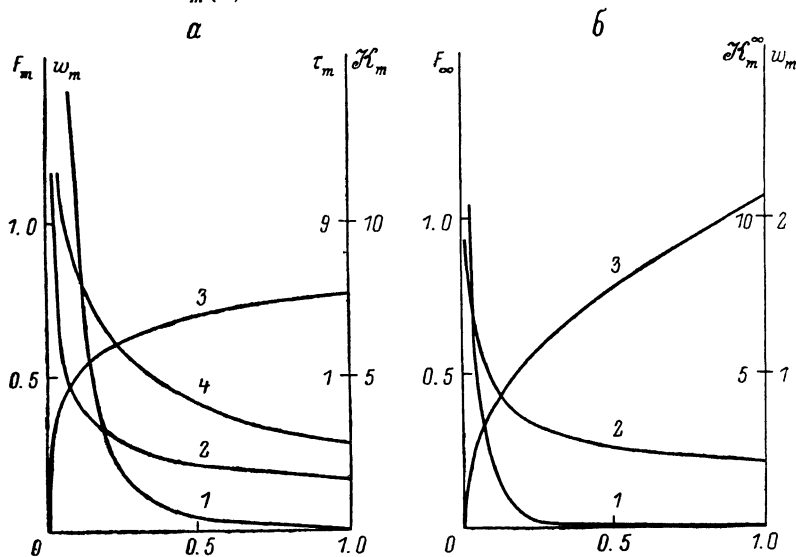


Рис. 4.

а: 1 —  $F_m$ , 2 —  $\mathcal{H}_m$ , 3 —  $w_m$ , 4 —  $\tau_m$ ; б: 1 —  $F_\infty$ , 2 —  $\mathcal{H}_m^\infty$ , 3 —  $w_m^\infty$ .

Для ДС, удовлетворяющей условиям (16), критерием возбуждения генерации будет

$$\bar{\alpha}_r - \gamma_r \equiv (\Sigma - j\pi R^2)[K] > g_c = \frac{1 - \chi}{l}. \quad (17)$$

Здесь  $g_c$  — пороговый коэффициент усиления, определяемый через коэффициент отражения зеркал  $\chi$  и протяженность ДС  $l$ .

Выражение (17) накладывает ограничение снизу на концентрацию капель  $[K]$ . Отметим, что, несмотря на существенную неоднородность ДС, модовая структура резонатора сохраняется, если длина рассеяния света на каплях  $l_p \gg l$  ( $l_p \gg 1/\pi R^2 [K]$ ).

Условия (16), (17) определяют необходимые для возбуждения генерации значения параметров ДС  $R$ ,  $[K]$ ,  $P_{XY}$ .

Выше предполагалось, что продукт  $Y$  реакции (I) не реагирует с  $M$ . Однако для реакции накачки вида  $M + X_2 \rightarrow MX + X$  следует учитывать рекомбинацию  $M$  и  $X$ . Такая рекомбинация наиболее эффективно протекает на поверхности капли. Для ее учета достаточно сделать замену в формулах (9), (11), (16)

$$Qy_{XY}^{(\infty)} \rightarrow 2Q_{\pi}y_{X_2}^{(\infty)}, \quad (Q - H)y_{XY}^{(\infty)} \rightarrow 2(Q_{\pi} - H)y_{X_2}^{(\infty)},$$

где  $Q_{\pi}$  — энергия экзотермичности реакции  $M + 1/2X_2 \rightarrow MX$ .



### 3. Расчеты для конкретных ДС

Применим полученные результаты к расчету усиления для ряда конкретных реакций в ДС. Рассматривались неразбавленные смеси  $M-X_2$  ( $y_{X_2}^{(\infty)}=1/m_{X_2}$ ), приведенные в таблице. Отметим, что для пар  $M-X_2$  (1, 3, 4) наблюдалась лазерная генерация при ЭВП.

№ пары	$M-X_2$	$(RP_{XY}^2)_c \cdot 10^6$ , см $\cdot$ атм $^2$	$\lambda_m$ , мкм	$(RP_{XY}^2)_c^{(\infty)} \cdot 10^5$ , см $\cdot$ атм $^2$	$\lambda_m^{(\infty)}$ , мкм
1	Li-F $_2$	10	14	4	16
2	Li-Cl $_2$	1.5	19	0.15	23
3	Al-F $_2$	0.4	15	0.07	18
4	Mg-F $_2$	0.4	17	0.05	22

Приведем более подробно результаты расчетов для пары Li-F $_2$ . Для молекулы LiF  $\theta_r=1.9$  К,  $\theta_v=1.3$  кК, энергия экзотермичности (1)  $Q=101$  ккал/моль, теплота испарения Li  $H=35$  ккал/моль. Было принято также, что доля энергии  $Q$ , идущая в колебания,  $\eta=0.75$ , исходная температура  $T_\infty=300$  К. Для температуры капли получается  $T_0=1.3$  кК ( $P_{F_2} \sim 0.1$  атм). Тогда из (11) следует, что в зону инверсии постукает доля колебательной энергии, выделяемой в (1),  $\kappa=0.7$ . Согласно (14), инверсия реализуется для вращательных уровней  $j > j^*=4$ . Необходимое для расчета усиления значение параметра  $E=0.9$  (см. (15)). Из рис. 4, а находим, что максимум усиления достигается через время  $\tau_m=1.7$  для уровней  $v_m=10$ ,  $j_m=16$ , соответствующая длина волны излучения  $\lambda_m$  приведена в таблице. Величина  $F_m(E)=0.2$ . При расчете сечения усиления использовалось значение вероятности радиационного перехода  $A=70$  с $^{-1}$  [13] и учитывалось ударное уширение. Тогда  $\sigma^*=4.5 \cdot 10^{-16}$  см $^2$ ·атм. Для оценки скорости VT-релаксации LiF $^+$  принималось  $\tau_{VT}^*=1$  мкс·атм (см. раздел 1). С использованием этих величин рассчитывалось входящее в условие усиления (16)  $(RP_{F_2}^2)_c$  (см. таблицу).

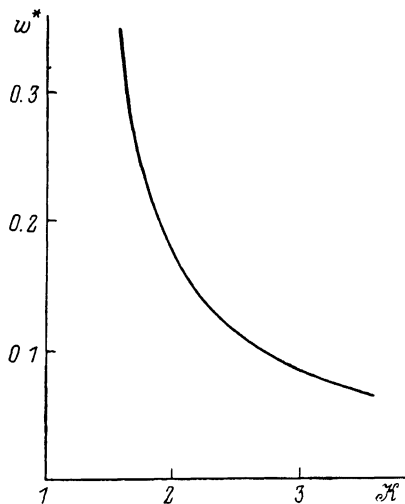


Рис. 5.

Для колебательных уровней  $v > v^*$  ( $X$ ) возможно существование инверсии на длительных временах  $t \gg \tau_{VT}$ , например, для  $j=j_m=16$   $v^*=10$  (рис. 5). Максимальное усиление при этом реализуется для уровней  $v_m^{(\infty)}=15$ ,  $j_m^{(\infty)}=18$ , определяемых из рис. 4, б. Соответствующая длина волны  $\lambda_m^{(\infty)}$  приведена в таблице, там же представлено значение  $(RP_{F_2}^2)_c^{(\infty)}$ . Аналогичные расчеты были проведены и для остальных пар  $M-X_2$ , представленных в таблице.

Пользуясь полученными результатами для каждой пары  $M-X_2$ , можно определить параметры ДС, необходимые для получения усиления. Так, в ДС Li-F $_2$  критерий (16) выполняется для достаточно крупных капель с  $R=10$  мкм при значительных давлениях  $P_{F_2} < 0.3$  атм. При  $P_{F_2}=0.1$  атм  $\Sigma = \text{Supr } \bar{\alpha}_r/[K] = 3 \cdot 10^{-5}$  см $^2$  (см. (15)), и для достижения усиления  $10^{-3}$  см $^{-1}$  концентрация  $[K]$  должна превышать  $50$  см $^{-3}$ , что соответствует осредненной по объему концентрации металла  $10^{16}$  см $^{-3}$ . При таких параметрах ДС усиление сохраняется и на длительных временах  $t \gg \tau_{VT}$ .

### 4. Оценки усиления излучения в паровых следах за каплями

При рассмотрении ДС, создаваемой при ЭВП, необходимо учитывать движение капель, их дробление, испарение за счет аэродинамического нагрева,

образование инверсии в следах. Приведем оценки этих эффектов. Крупные капли  $M$ , влетающие в окислитель, быстро дробятся. Дробление происходит, если  $\rho u_k^2 R / \sigma_M > 10$  [14] ( $\sigma_M$  — коэффициент поверхностного натяжения  $M$ ). Для  $[X_2] = 10^{18}$  см $^{-3}$ ,  $u_k = 10^6$  см/с,  $\sigma_{Li} = 400$  дн/см $^2$  получается  $R > 0.5$  мкм. Мелкие капли ( $R \leq 1$  мкм) тормозятся в окислителе за времена  $t_D \approx R/u_k \times \times ([M_K] m_H / [X_2] m_{X_2})$  [15], пролетая расстояние  $l_D \approx u_k t_D$ . При  $R \leq 1$  мкм получается  $t_D \leq 1$  мкс и  $l_D \leq 1$  см. Следовательно, за времена  $t < t_3$  мелкие капли  $M$  успевают затормозиться в резонаторе и вносят вклад в усиление, описываемое приведенной выше моделью.

Движущиеся капли испаряются, за ними образуются горячие паровые следы. Размеры горячей зоны в следе малы ( $R \times R \times u_k \frac{R^2}{D}$ ), температура большей части следа близка к начальной  $T_\infty$ . Эта часть следа содержит  $MX^+$  и обеспечивает усиление на временном интервале  $\tau_{VT}(T_\infty)$ . Вклад в  $\bar{\alpha}$  от следов  $(\bar{\alpha}_r)_c$  для времен  $t < \tau_{VT}(T_\infty)$  равен

$$(\bar{\alpha}_r)_c = \sigma_0 \sqrt{\frac{2\theta_r}{T_\infty}} e^{-s/2} \frac{k\theta_v \left( \frac{Q\eta}{k\theta_v} \sqrt{\frac{2\theta_r}{T_\infty}} - 1 \right)}{Q\eta} \langle [M] \rangle \nu,$$

где  $\langle [M] \rangle = [M_K][K]4/3\pi R^3$  — осредненная по объему концентрация  $M$ ,  $\nu$  — доля испаренного металла.

При учете лишь аэродинамического нагрева получаем, что для затормозившихся капель  $\nu = 1 - \exp(-u_k^2/2c_D H)$ , где  $c_D \approx 3$  [15]. Для пары Li—F $_2$  при  $u_k = 10^6$  см/с,  $P_{F_2} = 0.1$  атм получаем  $\nu = 0.2$ ,  $(\bar{\alpha}_r)_c = 2 \cdot 10^{-18}$  см $^2$   $\langle [M] \rangle$ . Для сравнения приведем значение  $\bar{\alpha}_r$  из (13) для неподвижных капель. При  $P_{F_2} = 0.1$  атм,  $R = 1$  мкм,  $t = 2$  мкс  $\sim t_3$ ,  $\bar{\alpha}_r = 2 \cdot 10^{-18}$  см $^2$   $\langle [M] \rangle$ . Видно, что  $(\bar{\alpha}_r)_c \approx \bar{\alpha}_r$ , т. е. вклад в усиление от следов порядка вклада от затормозившихся капель. Для достижения  $\bar{\alpha} = 10^{-3}$  см $^{-1}$  необходимо  $\langle [M] \rangle \geq 5 \cdot 10^{14}$  см $^{-3}$ .

### Заключение

Результаты описанных экспериментов и проведенного теоретического исследования свидетельствуют о реальности нового типа активной среды ХЛ — горячей газожидкостной мелкодисперсной среды. В такой среде возможно достижение высоких плотностей реагентов, а следовательно, и значительной запасенной химической энергии. Процессам образования инверсии и усиления в ДС присущи интересные особенности, например возможность длительного существования инверсии на временах, превышающих  $\tau_{VT}$ , и др. Лазеры с дисперсной активной средой на основе реакций окисления металлов являются возможным вариантом актуальных лазерных систем, излучающих в области  $\lambda > 15$  мкм.

В работе проанализирован конкретный случай образования гетерофазной лазерной среды при ЭВП в окислителе. Этот случай не является оптимальным, так как сопровождается быстрым разрушением активной среды. Другими возможными методами создания реагирующей ДС  $M$ — $XU$  могут быть инициирование внешним светом горения предварительно приготовленной ДС, инжекция горячих капель  $M$  в поток окислителя и др.

### Литература

- [1] Алферов В. И., Бирюков А. С., Дмитриев Л. М. и др. // ДАН СССР. 1979. Т. 248. № 3. С. 1093—1096.
- [2] Chiu H. Y., Somers R. M., Benson R. C. // Chem. Phys. Lett. 1979. Vol. 1. N 1. P. 203—208.
- [3] Игошин В. И., Пичугин С. Ю. // Квант. электр. 1983. Т. 10. № 9. С. 1922—1924.
- [4] Александров В. Я., Андреев А. П., Виноградов В. Ю., Подмошенский И. В. // Опт. и спектр. 1980. Т. 48. Вып. 3. С. 469—473.
- [5] Дженсен Р. // Химические лазеры / Под ред. Р. Гросса, Дж. Ботта. М.: Мир, 1980. 831 с.
- [6] Кочелав В. А., Пекар С. И. Теория спонтанной и стимулированной хемилюминесценции газов. Киев: Наукова думка, 1986. 264 с.

- [7] Бармашенко Б. Д. // Квантовая электроника. Киев: Наукова думка, 1985. № 28. С. 14—24.
- [8] Химические лазеры / Под ред. Н. Г. Басова. М.: Наука, 1982. 400 с.
- [9] Варывающиеся проволоочки / Под ред. А. А. Рухадзе. М.: Изд-во ИЛ, 1963. 341 с.
- [10] Васильев Л. А. Теневые методы. М.: Наука, 1968. 400 с.
- [11] Похил П. Ф., Беляев А. Ф., Фролов Ю. В. и др. Горение порошкообразных металлов в активных ередах. М.: Наука, 1972. 430 с.
- [12] Вильямс Ф. А. Теория горения. М.: Наука, 1971. 616 с.
- [13] Хьюбер К. П., Герцберг Г. Константы двухатомных молекул. М.: Мир, 1984. Т. 1. 408 с.
- [14] Раушенбах Б. В. Физические основы рабочего процесса в камерах сгорания воздушно-реактивных двигателей. М.: Машиностроение, 1964. 236 с.
- [15] Алферов В. И., Бирюков А. С., Божкова Е. А. и др. // Квант. электр. 1979. Т. 6. № 8. С. 1746—1754.

Институт полупроводников  
АН УССР  
Киев

Поступило в Редакцию  
5 февраля 1987 г.  
В окончательной редакции  
6 июня 1988 г.