

А. А. ФИЛЮКОВ, В. Б. МИТРОФАНОВ, Т. В. МИЩЕНКО

## ОПРЕДЕЛЕНИЕ ЭФФЕКТИВНОСТИ ТРЕХАТОМНОЙ РЕКОМБИНАЦИИ ИОДА В УСЛОВИЯХ ЛАЗЕРНОГО ФОТОЛИЗА

(Представлено академиком В. Н. Кондратьевым 15 VII 1974)

Исследование рекомбинации иода стало практически актуальной проблемой в связи с появлением газовых лазеров на основе алкилиодидов (<sup>1</sup>), поскольку выяснилась определяющая роль кинетики молекулярного иода в процессах тушения возбужденных атомов и генерации (<sup>5</sup>, <sup>6</sup>). В известных работах по рекомбинации иода (<sup>2-4</sup>) обычно используется метод импульсного фотолиза, который не может обеспечить высокую степень разложения иода при стандартных условиях наполнения кювет насыщенными парами иода комнатной температуры. Действительно, характерное рекомбинационное время жизни атомов иода при давлении около тора составляет  $10^{-4}$ — $10^{-5}$  сек., что значительно короче времени жизни молекулы иода в поле излучения наиболее мощных источников импульсного фотолиза ( $10^{-2}$ — $10^{-3}$  сек).

Нас интересовала эффективность атомов иода в качестве третьих тел в процессе рекомбинации. Обычно считалось, что их влияние на процесс рекомбинации пренебрежимо мало или во всяком случае не превосходит эффективности благородных атомов (<sup>7</sup>). Анализ прежних экспериментов (<sup>2-4</sup>, <sup>7</sup>) показал, что при малых степенях разложения молекулярного

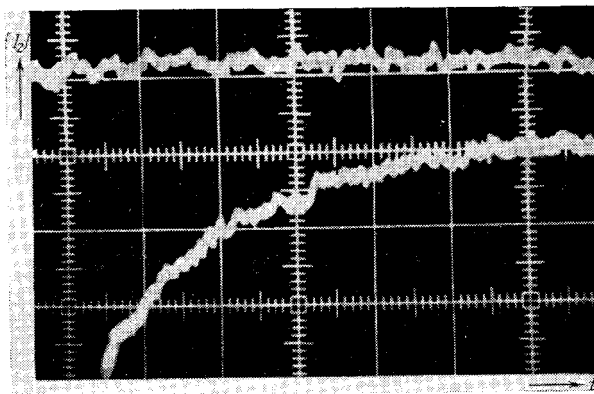


Рис. 1. Типичная оциллограмма хода рекомбинации, служившая входными данными для обработки на ЭВМ

иода эффект трехатомной рекомбинации может маскироваться большой скоростью рекомбинации на молекулах иода, концентрация которого нестационарна.

Лазерный фотолиз позволяет изучать наиболее информативный, начальный этап рекомбинации, когда парциальная концентрация молекулярного иода ввиду большой степени разложения мала.

Нами была проведена обработка результатов экспериментов по фотолизу смеси молекулярного иода с Ne и Xe гигантским импульсом второй гармо-

ники ( $\lambda=531$  нм) неодимового лазера. Начальная степень разложения иода, при энергии импульса на частоте второй гармоники около 2 дж, оказалась близкой к единице. Скорость рекомбинации в обрабатываемых экспериментах определялась с помощью абсорбционной спектроскопии молекулярного иода на длине волны 495 нм.

Результаты экспериментов в виде осциллограмм  $[J_2](t)$ , типа представленной на рис. 1, служили входной информацией для программы оптимального выбора кинетических констант.

Таблица 1

Константа рекомбинации  
( $10^{-32}$  см<sup>6</sup>·сек<sup>-1</sup>)

Третье тело	Данная работа	Известные данные
Ne	$1.09 \pm 0.089$	$0.92 \pm 0.03$ (2)
Xe	$2.99 \pm 0.093$	$2.99 \pm 0.09$ (2)
J <sub>2</sub>	$409 \pm 186$	47С (2) 526 (3) 384 (4)
J	$650 \pm 206$	—

На ЭВМ обрабатывалась модель, включающая, помимо обычной тройной рекомбинации на Ne, Xe и J<sub>2</sub>, реакцию трехатомной рекомбинации с учетом нестационарности концентрации молекулярного иода. Расчетным путем определялись значения констант рекомбинации на третьих телах Ne, Xe, J<sub>2</sub>, J, а также начальная концентрация и степень разложения иода. Область поиска указанных параметров была ограничена априорным указанием порядка их величины, за исключением константы рекомбинации на атомарном иоде, которая имела

возможность варьироваться в пределах трех порядков.

Каждый расчетный эксперимент — поиск со случайными начальными данными — рассматривался наряду с результатом физического опыта — осциллограммой — как равноправный способ получения результирующих данных.

Полученные значения скорости рекомбинации атомов иода в присутствии Ne и Xe хорошо согласуются с данными Кристи, Норриша, Гаррисона и Портера (2), несмотря на то, что отношение концентрации иода к буферному газу составляло

$$[J_2]/[Ne] = [J_2]/[Xe] = 5 \cdot 10^{-5},$$

что на порядок меньше критического значения разбавления, установленного в работе (8) как предел равновесного протекания реакции рекомбинации.

Большое значение константы трехатомной рекомбинации показывает, что кинетическая модель лазеров на атомарных переходах иода (9) нуждается в существенном изменении, учитывающем быстрый процесс очистки атомарных уровней (в основном, нижнего и рабочего уровня (10)) за счет трехатомной рекомбинации. Этот процесс критичен к плотности заселенности атомарных уровней и его роль растет с повышением плотности рабочего вещества.

Авторы благодарны В. Ю. Залесскому, Л. С. Ершову, А. Н. Кокушкину за предоставление осциллографических данных и условий проведения экспериментов.

Институт прикладной математики  
Академии наук СССР  
Москва

Поступило  
2 VII 1974

#### ЦИТИРОВАННАЯ ЛИТЕРАТУРА

- <sup>1</sup> I. V. V. Kasper, G. C. Pimentel, Appl. Phys. Lett., v. 5, 21, (1964). <sup>2</sup> M. I. Christie, R. G. Norrish et al., Proc. Roy. Soc. A, v. 216, 152 (1953); v. 231, 446 (1955). <sup>3</sup> D. L. Bunker, N. Davidson, J. Am. Chem. Soc., v. 80, 5085 (1958). <sup>4</sup> G. Porter, T. A. Smith, Proc. Roy. Soc. A, v. 261, 28 (1961). <sup>5</sup> В. Ю. Залесский, А. А. Венедиктов, ЖЭТФ, т. 55, 2088 (1968). <sup>6</sup> А. А. Филлюков, В. Я. Карпов, ЖЭТФ, т. 62, 119 (1972). <sup>7</sup> R. Engleman, Tr. N. Davidson, J. Am. Chem. Soc., v. 82, 4770 (1960). <sup>8</sup> M. T. Christie, J. Am. Chem. Soc., v. 84, 4066 (1962). <sup>9</sup> В. Ю. Залесский, ЖЭТФ, т. 61, 892 (1971). <sup>10</sup> Т. Л. Андреева, С. В. Кузнецова и др., Письма ЖЭТФ, т. 13, в. 11, 631 (1971).