

# ESTUDIOS PARA UN LÁSER QUÍMICO DE FLUORURO DE HIDRÓGENO DE ALTA PRESIÓN INICIADO POR RAYOS X

L. Azcárate, C. Moreno\* y J. Niedbalski

Centro de Investigaciones en Láseres y Aplicaciones CEILAP (CITEFA – CONICET)

Juan Bautista de La Salle 4397 – (B1603ALO) Villa Martelli, Buenos Aires,

\*Universidad de Buenos Aires, Instituto de Física del Plasma (UBA - CONICET).

Pabellón I, Ciudad Universitaria – (1428) Nuñez, Buenos Aires, Argentina.

e-mail: jniels@infovia.com.ar

Se presentan resultados preliminares del empleo de pulsos de rayos X como método para inducir, vía reacción química, la formación de moléculas estables excitadas con niveles láser a partir de la descomposición de componentes en una mezcla de gases que aportan los correspondientes iones para la reacción. Este trabajo constituye la etapa inicial en el desarrollo de un láser químico pulsado de fluoruro de hidrógeno (HF) de alta presión. La fuente de rayos X es un dispositivo “Plasma Focus” tipo Mather de cámara compacta que proporciona pulsos de ~50 ns de duración con energías de fotones distribuidas dentro de un amplio rango espectral (~70 – 300 keV). Se irradiaron separadamente mezclas de SF<sub>6</sub> – CH<sub>4</sub> y SF<sub>6</sub> – H<sub>2</sub> con dosis acumulativas de 8 y 22 mR, respectivamente, confinadas en una celda metálica de 3 mm de espesor de pared, 25 mm de diámetro interno y 480 mm de longitud a una presión total de 1.2 bar. Los moles de HF\* (v, J) formados y la energía total acumulada en los modos vibrorotacionales disponible para la emisión láser multilínea, se estiman por espectroscópica FTIR, a partir de la reducción que experimenta después de la irradiación la concentración de SF<sub>6</sub> en cada mezcla.

Preliminary results based on employing of X ray pulses as a method to induce, via chemical reaction, formation of stable excited molecules with laser levels starting of decomposition of gas mixtures whose components provide the corresponding ions for the reaction are presented. This work constitutes the initial stage in the development of a high-pressure pulsed hydrogen fluorine (HF) chemical laser. The X ray source is a compact chamber type Mather “Plasma Focus” device which provides pulses of ~50 ns duration with photon energies distributed within a wide spectral range (~70 – 300 keV). Mixtures of SF<sub>6</sub>- CH<sub>4</sub> and SF<sub>6</sub>-H<sub>2</sub> were separately irradiated with accumulative dose of 8 and 22 mR, respectively, confined in a metallic cell of 3 mm thickness, 25 mm internal diameter and 480 mm long at total pressure of 1.2 bar. From the reduction experienced by the SF<sub>6</sub> concentration after the irradiation in each mixture (determined by FTIR spectroscopy), the moles of excited HF formed and the overall accumulated energy in the vibrorotational modes available for the multiline laser emission are estimates.

## I. INTRODUCCIÓN

Los láseres químicos de halogenuros de hidrógeno son básicamente dispositivos en los cuales el medio propiamente activo y su inversión de población se obtienen directamente de una reacción química exotérmica que se desarrolla típicamente en una mezcla de dos gases moleculares en la que cada componente es el que aporta el átomo libre (o ion) para la reacción. En particular, el relativamente alto valor de entalpía involucrado en la formación de fluoruro de hidrógeno (HF) en conjunción con el considerable porcentaje de acumulación de la misma en los diferentes modos vibrorotacionales correspondientes a sus estados excitados metastables, hacen del láser de HF la fuente de radiación coherente que con mayor energía y eficiencia (energía láser / energía transferida al medio gaseoso) puede ser obtenida en la región del espectro electromagnético localizada en el mediano IR operando tanto en un modo de emisión continua (CW) como en un modo de emisión pulsada. Ambos parámetros dependen, en general, de los tipos y proporciones de gases empleados como reactivos en la mezcla, la presión de operación y fundamentalmente del método particular aplicado para iniciar la reacción.

En el presente trabajo se evalúa la irradiación directa con pulsos de rayos X de relativamente corta duración (~50 ns) y conteniendo fotones distribuidos dentro de un

amplio rango espectral (~ 70 – 300 keV) como un método para iniciar reacciones químicas volumétricamente homogéneas en una mezcla de gases de alta presión (≥1bar). Como consecuencia del amplio rango de penetración en metales de la radiación electromagnética de corta longitud de onda y su alta eficiencia en el proceso de descomposición de gases, este método permitiría reducir notablemente la complejidad constructiva de láseres químicos de HF. En estas primeras experiencias, se parte de mezclas de gases formadas por SF<sub>6</sub> y CH<sub>4</sub> ó H<sub>2</sub> que pueden ser manipuladas en condiciones de alta seguridad. Los pulsos de rayos X son provistos por un dispositivo “Plasma Focus” tipo Mather de 4.7 kJ, corrientemente empleado en investigaciones de plasmas densos magnetizados y como un generador de neutrones por fusión de deuterones.

## II. MECANISMOS DE DESCOMPOSICIÓN MOLECULAR Y CANALES DE REACCIÓN

La descomposición de especies moleculares en una mezcla de gases a alta presión irradiada con un pulso de fotones con energías distribuidas dentro de un amplio rango espectral, constituye un problema de características relativamente complejas debido a la diversidad de mecanismos de interacción (directos e indirectos) que suelen estar involucrados. La naturaleza de estos mecanismos

depende básicamente de las energías de los fotones en comparación con las energías de los electrones asociadas con los estados ligados tanto de la propia estructura de niveles de los átomos que componen las moléculas como de la correspondiente a los enlaces químicos covalentes. Para los diferentes tipos de moléculas que normalmente son empleadas como reactivos en mezclas, que pueden dar origen a la formación de fluoruro de hidrógeno excitado (HF\*), por ejemplo SF<sub>6</sub>, NF<sub>3</sub>, F<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, etc., los niveles de energía de ionización de los electrones de valencia y capas más profundas (K, L, etc.) de los átomos constituyentes y energías de ligadura química, varían desde unos pocos hasta varios centenares de eVs.<sup>1</sup>

Desde un punto de vista macroscópico, el decremento de intensidad (I/ I<sub>0</sub>) que experimenta un haz de fotones monocromático de intensidad inicial I<sub>0</sub> propagándose en un medio gaseoso, viene establecido por la conocida ley de Lambert-Beer, a partir de la cual su rango de penetración (z) es expresado por la relación:  $z = 1/\mu \ln(I/I_0)$ , donde  $\mu$  es el coeficiente de absorción del gas. Para cada especie gaseosa este coeficiente puede ser discriminado microscópicamente en función del mecanismo específico de interacción por medio de su correspondiente sección eficaz  $\sigma_i$ :  $\mu = N \sum \sigma_i$  donde N es la densidad molecular.

Dentro del pequeño intervalo de energías de fotones correspondiente a la región UV del espectro electromagnético, tales como los generados por arcos o descargas superficiales de alta tensión en los mismos gases con algunos de los conocidos montajes de preionización utilizados en láseres gaseosos o bien mediante tubos de descarga externos tipo "flash", los mecanismos de absorción que podrían ciertamente contribuir a la descomposición de especies moleculares son fundamentalmente la ionización y la excitación múltiple:  $\mu = N(\sigma_{ion} + \sigma_{exc})$ .

Para fotones cuya distribución de energías se extiende desde unos pocos hasta algunas centenas de keVs, los mecanismos de absorción prevalecientes ocurren vía los llamados efecto fotoeléctrico (EF) y dispersión Compton (DC). El primero de éstos se verifica típicamente con electrones ligados de las capas más profundas de los átomos constituyentes de las moléculas, con secciones eficaces  $\sigma_{ef}$  que escalan fuertemente en función de sus núme-

ros atómicos ( $Z^5$ ) y disminuyen como  $(1/h\nu)^{7/2}$  con la energía  $h\nu$  del fotón.<sup>2</sup> Este mecanismo origina vacancias de carácter transitorio en las mencionadas capas por eyección de electrones energéticos que son rápidamente cubiertas por recombinación con la subsecuente emisión de rayos X característicos.

La DC tiene lugar con los electrones muy débilmente ligados de las capas externas de los átomos, con una sección eficaz ( $\sigma_{ec}$ ) independiente de Z y que se incrementa linealmente con la energía del fotón.<sup>3</sup>

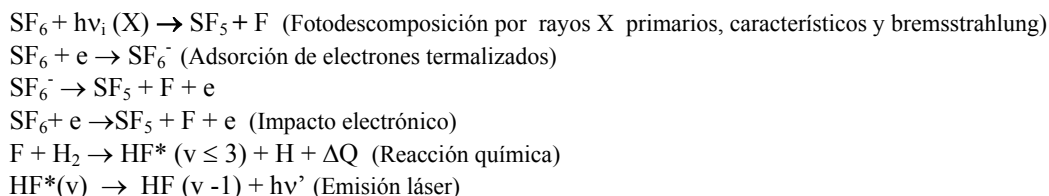
La contribución relativa de ambos mecanismos a la producción de poblaciones de electrones libres de variada energía y densidad en cada mezcla gaseosa, dependerá del peso estadístico de la distribución de energías de los fotones y de la intensidad del haz primario provisto por la fuente, respectivamente. Una vez producidos, estos electrones pierden sus energías a través de procesos colisionales elásticos e inelásticos de características complejas generando rayos X por bremsstrahlung<sup>4</sup> y excitación e ionización de átomos hasta su termalización.<sup>5</sup>

Del extremadamente simplificado análisis precedente, se especula que como resultado global de la irradiación de mezclas de gases con pulsos de rayos X, la descomposición molecular podría desarrollarse principalmente vía los siguientes procesos competitivos:

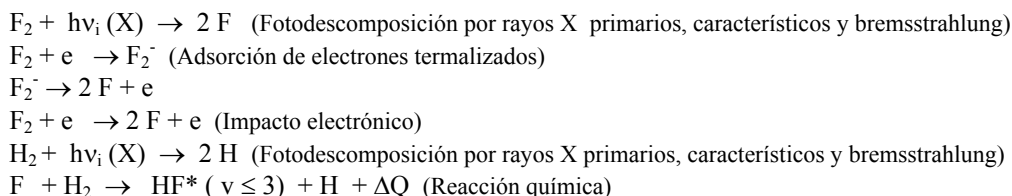
- 1) Interacción directa con rayos X primarios.
- 2) Impacto con electrones de bajas y altas energías generados por EF y DC.
- 3) Captura de electrones libres termalizados por las moléculas altamente electronegativas (attachment disociativo).<sup>5</sup>
- 4) Interacción con rayos X característicos, radiación UV dura y rayos X obtenidos por bremsstrahlung en el medio gaseoso.

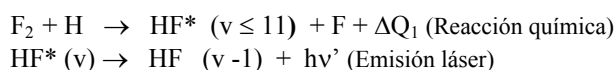
Como consecuencia de estos procesos, algunos de los más probables canales de descomposición molecular que son inferidos partiendo de mezclas basadas en SF<sub>6</sub> ó F<sub>2</sub>, y el subsecuente desarrollo de reacciones químicas con hidrógeno (atómico y molecular) para dar lugar a la formación de HF\* en sus diferentes modos vibrorotacionales, pueden ser representados por las siguientes ecuaciones elementales:

#### Mezclas (SF<sub>6</sub> – H<sub>2</sub>)



#### Mezclas (F<sub>2</sub> – H<sub>2</sub>)





En las ecuaciones precedentes,  $h$  es la constante de Planck,  $v$  es el número cuántico vibracional,  $v_i$  es la frecuencia correspondiente a los rayos X tanto primarios como los generados por cualquiera de los procesos descritos dentro del gas (característicos y bremsstrahlung) y  $\nu'$  es la frecuencia del fotón láser emitido. En la Tabla I se compilan valores de entalpía ( $\Delta Q$ ) asociados con las reacciones químicas elementales que dan origen a la formación de moléculas de halogenuros de hidrógeno y fluoruro de deuterio y los porcentajes de la misma que son transferidos a sus respectivos modos vibracionales, rotacionales y traslacionales.

alta intensidad, 2) descargas eléctricas estabilizadas por preionización UV<sup>9-11</sup> y 3) inyección directa de un haz de electrones de muy alta energía.<sup>12-14</sup>

Como característica general, la aplicabilidad del primer método resulta sólo efectiva con mezclas a relativamente bajas presiones (hasta algunas decenas de mbar). Esta restricción es una consecuencia de la baja eficiencia de las típicas fuentes basadas en descargas gaseosas de alta tensión (superficiales y volumétricas) para generar altos flujos de fotones en la región UV. Una extensión considerable del mencionado rango de presión fue recientemente demostrada a través de un significativo incre-

**Tabla I.** Valores de entalpía ( $\Delta Q$ ) correspondientes a reacciones químicas de formación de halogenuros de hidrógeno y fluoruro de deuterio y porcentajes de distribución de las mismas en los diferentes modos vibracionales, rotacionales y traslacionales.

Reacción	Vibración	Rotación	Traslación
$F + H_2 \rightarrow HF^* + H$ $\Delta Q = -32 \text{ kcal/mol}$	66 %	8.1 %	26 %
$F + D_2 \rightarrow DF^* + D$ $\Delta Q = -31.2 \text{ kcal/mol}$	66 %	7.6 %	27 %
$H + F_2 \rightarrow HF^* + F$ $\Delta Q_1 = -98 \text{ kcal/mol}$	60 %	SD	SD
$H + Cl_2 \rightarrow HCl^* + Cl$ $\Delta Q = -45.1 \text{ kcal/mol}$	39 %	7 %	54 %
$H + Br_2 \rightarrow HBr^* + Br$ $\Delta Q = -41 \text{ kcal/mol}$	55 %	4 %	41 %
SD : sin datos encontrados			

### III. ASPECTOS BÁSICOS DE LOS MÉTODOS DE INICIACIÓN DE REACCIONES QUÍMICAS EN LÁSERES DE HF PULSADOS

El grado de desarrollo de reacciones químicas en una dada mezcla de gases y consecuentemente la energía de salida en un láser de HF, esta directamente correlacionado con el método de iniciación aplicado a través de su eficiencia para crear átomos libres (particularmente de fluor) dentro de un amplio rango de presión operativa y con una aceptable homogeneidad volumétrica en su distribución.

En orden de complejidad constructiva creciente, la variedad de métodos que a nuestro conocimiento han sido implementados hasta el presente por medio de diferentes tipos de arreglos experimentales incluyen: 1) iluminación directa con pulsos ópticos generados por lámparas flash,<sup>6</sup> descargas superficiales<sup>7</sup> y por una fuente explosiva<sup>8</sup> de

mento de la densidad de flujo y frecuencia espectral de la emisión obtenidas por medio de una fuerte explosión.

Con el segundo de los métodos se emplean circuitos y configuraciones de electrodos con montajes de preionización incluidos cuyas características son similares a la de algunos de los corrientemente desarrollados para los conocidos láseres de  $N_2$ ,  $CO_2$  y haluros de gases nobles (excímeros). El problema crítico que se presenta en este caso, está esencialmente ligado con la dificultad de transferir energía a la mezcla gaseosa en condición de estabilidad, necesaria para la obtención de una homogénea distribución de átomos libres en todo el volumen limitado por los electrodos de descarga. Dicha estabilidad es fuertemente inhibida por el alto coeficiente de adsorción (attachment) que exhiben los principales componentes reactivos de las mezclas (típicamente usados como donores de fluor), por los electrones libres creados por preioniza-

ción, que conduce rápidamente a una fuerte reducción de su densidad inicial y a la subsecuente formación de numerosas descargas filamentosas o directamente a un “arco” a partir de unas pocas decenas de mbar de presión de esos gases en la composición de la mezcla. El agregado de un gas “buffer” ( Ne ó Ar ) para favorecer la difusión volumétrica inicial de los electrones libres resulta en este caso de crucial importancia.

El último de los métodos que al presente demostró ser por lejos el de mayor efectividad, requiere de un costoso y tecnológicamente complejo cañón electrónico a cátodo frío capaz de proporcionar haces de electrones de muy alta energía (0.7 – 2 MeV) con amplitudes de corriente de 30 – 40 kA. En general, este haz es inyectado en la mezcla gaseosa desde uno de los extremos de una celda de confinamiento cilíndrica, guiado por un campo magnético con configuración axial a la misma de algunos kGs de intensidad.

A altas presiones ( $\geq 1$  bar) la aplicación de este método viene limitada operacionalmente sólo a unos pocos disparos, debido a la necesidad de separar por medio de una lámina relativamente transparente al haz de electrones (de algunas centenas de  $\mu\text{m}$  de espesor), las regiones de alto vacío desde donde se inyecta el haz de electrones con la de alta presión conteniendo la mezcla. En efecto, particularmente cuando se emplean mezclas altamente reactivas formadas por  $\text{F}_2$  e  $\text{H}_2$ , el incremento de temperatura junto con la aparición de considerables sobrepresiones durante el desarrollo la reacción química y la degradación progresiva que experimenta la lámina por absorción de los electrones componentes de baja energía del haz (en mayor o menor grado siempre presentes), conduce rápidamente a su ruptura mecánica.

El método propuesto en este trabajo pretende simplificar considerablemente el diseño del láser de modo tal que una simple celda metálica cilíndrica para confinar los gases a alta presión y una fuente de rayos X externa capaz de proporcionar pulsos de relativamente alta intensidad es todo lo requerido.

#### IV. ARREGLO EXPERIMENTAL

La Fig. 1 muestra el esquema del arreglo experimental empleado para los ensayos de irradiación. La celda de confinamiento de gases o celda de reacción (un pequeño láser) es formada por un tubo de Al de 3 mm de espesor de pared, 25 mm de diámetro interno y 480 mm de longitud. Sus extremos son acoplados a dos piezas que fueron maquinadas con ángulo de Brewster para adaptar ventanas de  $\text{CaF}_2$  de 4 mm de espesor y 49 mm de diámetro para la salida del haz láser. El sello de presión en ambos extremos se obtiene por medio de O’rings incorporados en adecuados alojamientos. El Al fue elegido para estas primeras experiencias por tres fundamentales razones: 1) bajo costo y fácil maquinado, 2) de acuerdo a tablas de compatibilidades de gases con metales presenta una relativamente baja reactividad química con el producto final de la reacción (HF) y 3) un bajo coeficiente de absorción a los rayos X. La celda fue inicialmente sometida a una prolongada evacuación con un sistema convencional de bombas mecánica y difusora a un nivel de presión residual de  $\sim 10^{-3}$  mbar con la finalidad de eliminar

las impurezas ocluidas en la superficie de su pared interna y posteriormente pasivada con  $\text{SF}_6$  a presiones de hasta 1.7 bar.

La fuente de rayos X es un dispositivo “Plasma Focus” tipo Mather<sup>15</sup> de cámara compacta que opera mediante una descarga relativamente rápida de alta tensión ( $\sim 30$  kV) y corriente ( $\sim 350$  kA) en atmósfera de  $\text{D}_2$  a baja presión ( $\sim 4$  mbar)<sup>16</sup>. Este dispositivo es normalmente empleado como generador de neutrones por reacciones de fusión termonuclear D-D.

La emisión de rayos X constituye un proceso secundario que ocurre en concomitancia con la emisión de neutrones como consecuencia de la formación de una haz de electrones por autocompresión de plasma en la región del foco de alta temperatura. Un reciente estudio<sup>17</sup> muestra que su origen es bremsstrahlung resultante de la interacción de ese haz con la base de sustentación mecánica del electrodo sujeto a alta tensión.

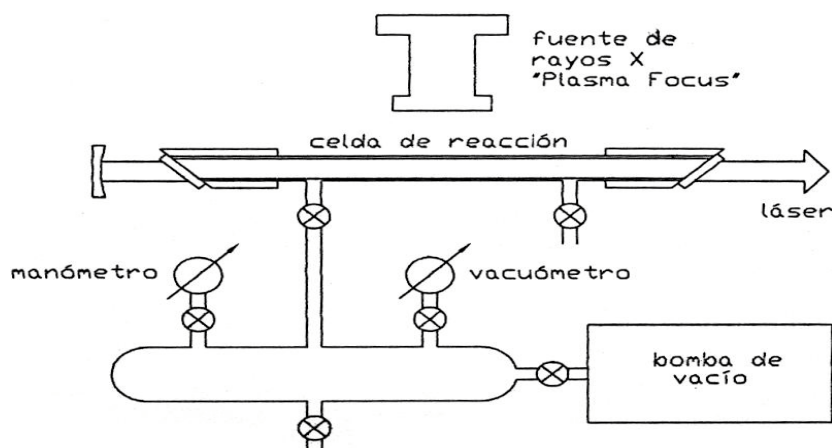
Desde un punto de vista operativo, el inconveniente que presenta el “Plasma Focus” como fuente de rayos X para esta aplicación, es el carácter aleatorio de la emisión que proporciona, tanto en lo que hace a repetitividad (disparo a disparo) como a la reproducibilidad de su intensidad. Así, en una secuencia de cinco disparos consecutivos sólo dos o tres resultan con una efectiva emisión de rayos X. Cuando ésta ocurre, es registrada por un sistema de detección localizado a varios metros de la fuente que está formado por un scintilador plástico (base polivinil tolueno), un fotomultiplicador rápido y un osciloscopio digital. El dispositivo genera pulsos de  $\sim 50$  ns de duración total con energías de fotones distribuidas dentro de un amplio rango espectral ( $\sim 70 - 300$  keV).

En la Fig. 2 se muestra la evolución temporal característica del pulso de rayos X.

#### V. RESULTADOS

Se irradiaron separadamente mezclas de  $\text{SF}_6\text{-CH}_4$  y  $\text{SF}_6\text{-H}_2$  cuya preparación se realizó en la propia celda con concentraciones preestablecidas de cada componente determinadas por sus presiones parciales hasta un valor máximo de 1.2 bar. Cada una de éstas fue mantenida durante un tiempo relativamente prolongado (varios días) con el fin de permitir la difusión intermolecular entre componentes. Tanto el  $\text{SF}_6$  como el  $\text{CH}_4$  fueron cuantificados por espectrometría FTIR mediante una calibración de la absorción con espectros patrones. Para realizar la cuantificación, se transfiere una fracción muy pequeña de la mezcla preparada a una celda cilíndrica de acero inoxidable (316 L) de 10 cm de longitud y 2.5 cm de diámetro interno, sellada en ambos extremos con ventanas de NaCl, y previamente evacuada a una presión de  $\sim 10^{-8}$  mbar empleando un sistema de vacío turbomolecular.

El método adoptado para evaluar la densidad del  $\text{HF}^*(\nu, J)$  formado, consistió en determinar la variación que experimenta la concentración de  $\text{SF}_6$  después de la irradiación, a través de la medición de la amplitud de uno de sus picos de absorción más relevantes, en cuatro muestras tomadas a diferentes presiones (1, 5, 10 y 20 mbar). El espectro de  $\text{SF}_6$  fue elegido para estas mediciones por la simplicidad que presenta su estructura de picos de absorción en comparación con el del  $\text{CH}_4$  y por



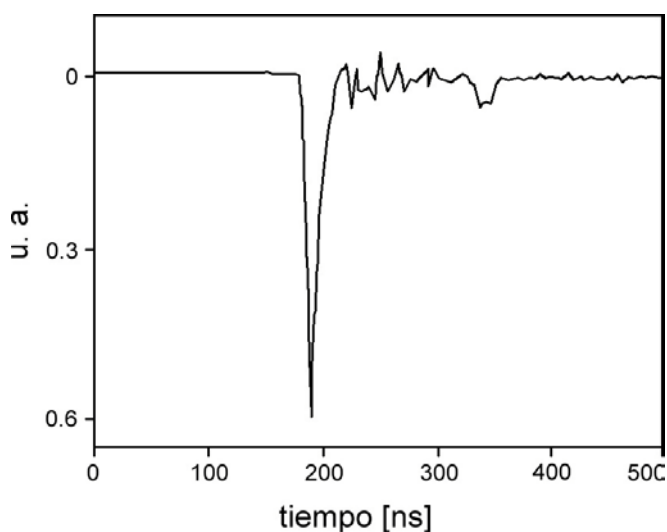
**Fig. 1** Esquema del arreglo experimental empleado para los ensayos de irradiación con pulsos de rayos X.

ser el componente común en ambas mezclas. El  $H_2$  no presenta absorción en el IR. La Fig. 3 muestra el pico de absorción correspondiente al modo vibracional  $\nu_3$  (estiramiento degenerado de la ligadura S-F) que es tomado como referencia.

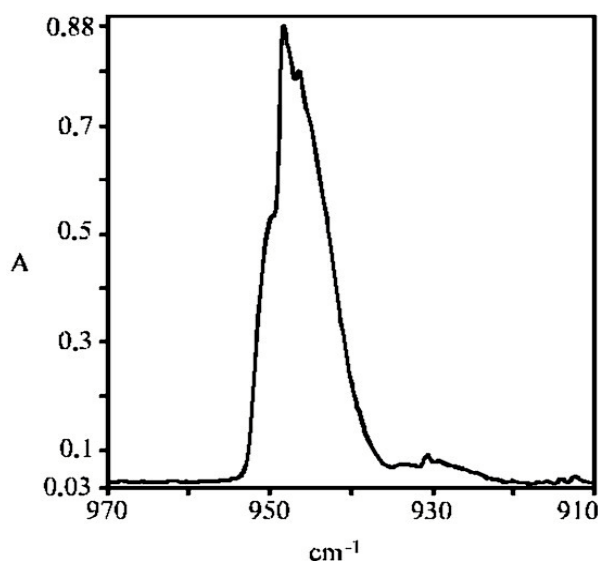
Para el procedimiento de irradiación, la celda se fijó a una distancia de  $\sim 35$  cm de la base de sustentación de los electrodos de la cámara del dispositivo "Plasma Focus", desde donde los pulsos de rayos X son emitidos con una apertura angular de  $\sim 40^\circ$  con respecto de su eje de simetría. Esta distancia permitió la irradiación efectiva de la totalidad de la celda, tal como fue verificado mediante el empleo de películas radiográficas especiales (Curix ST-G2 de Agfa) dispuestas en la inmediata vecindad de la misma en su parte posterior. La dosis proporcionada a esa distancia, que típicamente varía por disparo desde algunas décimas hasta unos pocos mR, fue determinada por medio de análisis densitométrico de películas alojadas

en un soporte especial "badge". Debido al carácter aleatorio de la emisión que proporciona el "Plasma Focus", se irradiaron separadamente una serie de placas, cuyas lecturas fueron correlacionadas con las amplitudes de los pulsos de rayos X registrados por el sistema de detección lo cual permitió conocer de manera inmediata (por lectura directa en el osciloscopio) la dosis acumulativa suministrada a las diferentes mezclas.

En la tabla II se muestran los resultados para dos mezclas irradiadas, los valores de dosis acumulativas suministradas a las mismas y la disminución porcentual que experimentan las concentraciones de  $SF_6$  después de la irradiación determinadas espectroscópicamente. A partir de las magnitudes consignadas en la misma, el volumen total irradiado en la celda ( $235\text{ cm}^3$ ) y considerando como hipótesis de mínima que las moléculas de  $SF_6$  en ambas mezclas resultan sólo monodisociadas a través de la variedad de procesos interactivos descritos en Sec.II, sim-



**Fig. 2** Evolución temporal característica del pulso de rayos X  
Horizontal: 100 ns/div; Vertical: UA



**Fig.3** Pico de absorción del espectro de  $SF_6$  tomado como referencia para determinar la variación de su concentración en ambas mezclas después de la irradiación

**Tabla II** Resultados de las experiencias de irradiación con pulsos de rayos X de dos mezclas de alta presión basadas en SF<sub>6</sub>

Reactivos	Relación de mezcla (%)	Presión total (bar)	Dosis Total (mR)	Variación de SF <sub>6</sub> (%)
SF <sub>6</sub> - CH <sub>4</sub>	90 / 10	1.2	8	4
SF <sub>6</sub> - H <sub>2</sub>	60 / 40	1.2	~22	11

ples cálculos permiten estimar en  $\sim 1.12 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$  y  $\sim 2.04 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$  las densidades de átomos libres de fluor creados para los dos valores de dosis acumulativas (8 y 22 mR), respectivamente, y que se corresponden con similares valores de densidades de población ( $\Delta N$ ) de HF\*(v,J) formados, asumiendo que la totalidad de los átomos de fluor reaccionan con los iones H proveniente del CH<sub>4</sub> o con H<sub>2</sub>. Este argumento es válido para cualquiera de las mezclas, en virtud de la muy alta afinidad reactiva que presenta el flúor atómico (debido a su fuerte carácter electronegativo) por hidrógeno, tanto cuando éste último forma parte de compuestos hidrocarbonados (CH<sub>4</sub>) como en su estado atómico o molecular. Expresando  $\Delta N$  en moles y tomando como valor de entalpía 32 kcal / mol para ambas reacciones junto con el porcentaje de la misma que es transferida a los niveles vibrorotacionales como se detalla en Tabla I, las respectivas densidades de energía acumuladas en éstos resultan de 0.187 y 0.340 J/ cm<sup>3</sup>, la mitad de las cuales estaría cuánticamente disponible para transiciones láser multilínea de acuerdo a las co-nocidas reglas de selección.

Por otra parte, la relativamente reducida energía transferida a los modos translacionales que, en principio, es estadísticamente equipartida con la totalidad de las moléculas presentes en el volumen de la celda y la alta capacidad calorífica del SF<sub>6</sub> remanente sin disociar mantienen el medio gaseoso sin apreciables cambios de temperatura. Este hecho fue corroborado insertando una termocupla en la celda.

Es de hacer notar que el problema del incremento de temperatura del gas como así también de la aparición de fuertes ondas de presión generadas por las reacciones, pueden si presentarse para el caso de otra mezcla de trabajo espontáneamente reactiva, como por ejemplo la constituida por F<sub>2</sub> e H<sub>2</sub>, para la cual se hace necesario diseñar el láser incorporando una válvula especial de alivio de presión con el fin de preservar las ventanas de sellado de la celda (CaF<sub>2</sub>) de una posible ruptura.

Con el fin de estimar el requerimiento de densidad de inversión de población ( $\Delta N_T$ ) en un medio activo de HF\*(v, J) confinado en una celda cilíndrica con las dimensiones geométricas usadas en este trabajo (longitud L = 480 mm y diámetro d = 25 mm) para que un flujo de fotones emitidos espontáneamente desde una pequeña región situada en uno de sus extremos comience a amplificarse por emisión estimulada cuando se propaga a través del medio invertido y alcance el

umbral de saturación en el otro extremo por un simple paso, se parte de la bien conocida expresión:

$$\sigma_{ij} \Delta N_T L \approx \ln [16 (L / d)^2],$$

que relaciona los parámetros del medio amplificador y los geométricos de la celda de reacción, donde  $\sigma_{ij}$  es la sección eficaz de emisión estimulada correspondiente a transiciones entre niveles vibrorotacionales ij.

Tomando como ejemplo un valor representativo de  $\sigma = 8 \times 10^{-16} \text{ cm}^2$  para una simple transición rotacional<sup>18</sup> de la banda de emisión específica entre dos estados vibracionales con números cuánticos bajos ( $v \leq 3$ ) del HF\* que son los predominantemente poblados para los tipos de reacciones químicas involucradas con las presente mezclas (ver Sec. II), de la expresión dada se obtiene  $\Delta N_T \approx 2.25 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ . La comparación de este resultado con los determinados experimentalmente para ambas mezclas, muestra que aún para las relativamente bajas dosis acumulativas de rayos X aplicadas, el medio activo formado puede proporcionar suficiente ganancia como para que el presente láser opere en saturación (ganancia lineal) sin el uso de una cavidad óptica convencional.

## CONCLUSIONES

Se evaluó en forma preliminar un método de iniciación para un láser químico de HF de alta presión basado en la irradiación directa con pulsos de rayos X de relativamente corta duración. En esta primera etapa se emplearon mezclas de gases reactivos químicamente estables (sin reacción espontánea entre componentes) en las cuales la inversión de población asociada con la producción de HF\*(v,J) depende fundamentalmente de la descomposición que experimenta el SF<sub>6</sub> mediante los mecanismos descritos en Sec. II. Los resultados obtenidos (Sec.V) proporcionan una referencia práctica fundamental a fin de estimar la magnitud de la dosis de rayos X que con similares características (temporal y espectral) a la aplicada acumulativamente en este trabajo debería ser suministrada en la forma de un único pulso a una mezcla basada en SF<sub>6</sub> para que el pequeño láser empleado en estas experiencias pueda operar con una considerable extracción de energía a través de un simple (modo ASE) y doble paso.

La posibilidad de construir una fuente de rayos X capaz de proporcionar pulsos de algunas decenas de ns

de duración y con intensidades de varios órdenes de magnitud por encima de los obtenidos corrientemente con dispositivos "Plasma Focus" de medianas energías, hace altamente promisorio la perspectiva para el presente método de iniciación. Estos niveles de intensidad podrían ser ciertamente generados (vía bremsstrahlung) empleando un cañón de electrones a cátodo frío operando en régimen de emisión explosiva con tensiones de hasta 300 kV y amplitudes de corriente de descarga

de 20 – 30 kA.

Como segunda etapa del trabajo se contempla el empleo de una mezcla quasi espontáneamente reactiva formada por  $F_2$  e  $H_2$  y gases estabilizadores, con la que sólo un muy bajo nivel de descomposición de  $F_2$  ó  $H_2$  (ver Sec. II) es necesario para el inicio y propagación automática de las reacciones en forma homogénea en todo el volumen de la celda.

## REFERENCIAS

- [1] R. Werst. Handbook of Chemistry and Physics, CRC Press Inc, 58<sup>th</sup> Edition (1976).
- [2] R.M.Sternheimer, Methods of Experimental Physics, (L. Yoan and C. Wu, eds), Vol.5. Part A, p.1, Academic Press, New York (1961).
- [3] T. Stratton, (Am. Inst. Phys., C.M. Herzfeld, ed.), Vol.3 Part I, p.663, Reinhold, New York (1962).
- [4] V. Kremnev and Yu Kurvatov, Sov. Phys. Tech. Phys. 17, 626 (1972).
- [5] E. Nasser, Fundamentals of Gaseous Ionization and Plasma Electronics, (Wiley Interscience, New York, Cap.3) (1971).
- [6] S. Suchard, A. Ching and J. Whittier, Appl. Phys. Lett. 21(6), 274 (1976).
- [7] M. Sabonnadiere, V. Tcheremiskine, P.Delaporte and M. Sentis, Journal de Physique, Vol.9 (P5), 21 (1999).
- [8] V. Borisov, V. Burtzev, V. Velikanov, S. Kormer, M. Sinitzyn, V. Urlin and V. Shchurov, Kvantovaya Elektronika, Vol.23 (4), 323 (1996).
- [9] E.Gordon, V. Matyushenko, P.Repin, and V.Sizov, Sov. J. Quantum Electron. 20 (5), 465 (1990).
- [10] F.Goryunov., K. Gurkov, M. Lomaev, E. Sosninand V. Tarasenko, Quantum Electron., Vol. 21, 1064 (1994).
- [11] K.Waichman, D. Chuchem and Y. Kalisky, IEEE Journal of Quantum Electronics, Vol.32 (2), 357 (1996).
- [12] V.Abolentsev, G.Nedoseev, V.Rusanov, A. Spektor, V.Smol'ski, and V.Shiryaevskii., Sov. J. Quantum Electron. 20 (6), 630 (1990)
- [13] S.D.Velikanov, M.V. Sinitsyn, V.D. Urlin and V.V. Shchurov, Kvantovaya Elektronika, Vol.23, (1), 25 (1996).
- [14]V.Orlovskii, E. Sosnin, V. Tarasenko, A. Ponomarenko, and Y. Khapov, Technical Physics, Vol. 44 (1), 69 (1999).
- [15] J. Mather, Phys. of Fluids, Vol. 8, 366 (1965).
- [16] C. Moreno, J. Martinez, H. Bruzzone y A. Clause, Anales AFA, Vol. 11, 142 (1999).
- [17] V. Raspa, R. Llovera, A. Clause y C. Moreno, Anales AFA, Vol. 14, 115 (2002).
- [18] A. Ben-Shaul, G.Hofacker, K. Kompa, J. of Chem, Phys. 59, 4664 (1973).