

Характеристики электроразрядного генератора атомов иода для химического кислородно-иодного лазера

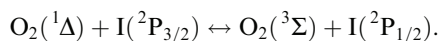
В.Н.Аязов, М.В.Воробьев, А.И.Воронов, Н.В.Купряев, П.А.Михеев, Н.И.Уфимцев

Методом лазерно-индуцированной флуоресценции определялись концентрации молекул иода на выходе электроразрядного генератора атомарного иода. В качестве донора атомарного иода использовался метилиодид CH_3I . Доля иода, извлекаемого из CH_3I в генераторе, составляла $\sim 50\%$. Найдены оптимальные режимы работы, при которых на выходе из генератора $80\% - 90\%$ содержащегося в потоке иода находилось в виде атомов. Эта доля уменьшалась во время транспортировки из-за рекомбинации, и в месте инжекции иода в кислородный поток она составляла $20\% - 30\%$. Доля мощности разряда, тратившаяся на диссоциацию CH_3I , составляла $\sim 3\%$.

Ключевые слова: кислородно-иодный лазер, генератор атомов иода, электрический разряд, лазерно-индуцированная флуоресценция, CH_3I .

1. Введение

Активную среду химического кислородно-иодного лазера (ХКИЛ) обычно получают смешением паров молекулярного иода с потоком электронно-возбужденного кислорода в синглетном состоянии $\text{O}_2(^1\Delta)$, в присутствии которого молекулы иода быстро диссоциируют на атомы. ХКИЛ действует на спин-орбитальном переходе атомарного иода $\text{I}(^2\text{P}_{1/2}) \rightarrow \text{I}(^2\text{P}_{3/2})$. Инвертирование лазерного перехода осуществляется в ходе резонансного ЕЕ-обмена в процессе



Способ приготовления активной среды ХКИЛ путем смешения паров молекулярного иода с кислородным потоком имеет как преимущества, например отсутствие в схеме ХКИЛ дополнительного узла для генерирования атомов иода, так и недостатки. Во-первых, для возгонки паров I_2 в схеме ХКИЛ используется парогенератор молекулярного иода. В мощных установках ХКИЛ температура нагреваемого иодного потока достигает 420 K [1]. Во избежание осаждения иода на стенках тракт транспортировки и узел смешения подогреваются. Это вызывает рост температуры активной среды, что негативно сказывается на эффективности лазера. Во-вторых, около 10% синглетного кислорода $\text{O}_2(^1\Delta)$ затрачивается на диссоциацию I_2 . Расходуемую на это энергию можно преобразовать в лазерное излучение, если использовать атомы иода вместо молекул. Согласно оптимистической оценке [2] это может привести к повышению химической эффективности ХКИЛ вплоть до 40% . В-третьих, молекула I_2 является эффективным тушителем $\text{I}(^2\text{P}_{1/2})$, что приводит к потере энергии, уменьшению длины активной зоны вдоль по потоку и к ограничению оптимальной концентрации атомов I , а следовательно, коэффициента

усиления слабого сигнала. При отсутствии I_2 в активной среде коэффициент усиления и длина активной зоны вдоль по потоку могут быть увеличены. Таким образом, инжекция заблаговременно приотловленных атомов иода в поток синглетного кислорода вместо молекул иода есть очевидный путь повышения эффективности ХКИЛ.

Одним из перспективных способов получения необходимых количеств атомарного иода является диссоциация иодсодержащих молекул в плазме электрического разряда. Первые эксперименты с самостоятельными разрядами выполнялись в [3, 4] с использованием I_2 в качестве донора атомов иода, газов He и Ag в качестве газоносителей для паров иода и микроволновых и радиочастотных разрядов в качестве источников плазмы. Было установлено [3], что только $20\% - 40\%$ молекул I_2 продиссоциировали, но, тем не менее, повышение выходной мощности лазера наблюдалось в обоих случаях. В недавней работе [5] продемонстрировано использование разряда постоянного тока для внешней наработки атомов иода в сверхзвуковом ХКИЛ. В этой работе степень предварительной диссоциации I_2 была низкой, всего 2% . Однако даже столь незначительное количество предварительно полученного атомарного иода привело за счет увеличения скорости диссоциации I_2 к увеличению мощности генерации на 80% при относительно малом его расходе. При повышении расхода иода всего на 30% выходные характеристики лазера с включенным и выключенным разрядами практически не отличались друг от друга. Авторы работ [3–5] наблюдаемые улучшения выходных характеристик ХКИЛ в режимах с предварительной диссоциацией иода объясняют благоприятными условиями для диссоциации I_2 в активной среде благодаря присутствию атомов I , необходимых для инициирования цепной реакции диссоциации. Низкая степень диссоциации молекул иода в разрядной плазме объясняется относительно малым сечением реакции диссоциации I_2 электронами.

В [6–9] показано, что метилиодид CH_3I является подходящим донором атомов иода. В [6, 7] исследовался импульсный ХКИЛ с объемной наработкой атомов иода в импульсном электрическом разряде. Были получены импульсы генерации длительностью $\sim 10\text{ мкс}$ с концент-

В.Н.Аязов, М.В.Воробьев, А.И.Воронов, Н.В.Купряев, П.А.Михеев, Н.И.Уфимцев. Самарский филиал Физического института им. П.Н.Лебедева РАН, Россия, 443011 Самара, ул. Ново-Садовая, 221; e-mail: azyazov@fian.smr.ru, mikheev@fian.smr.ru

рациями атомов иода, достигающими $1.8 \times 10^{15} \text{ см}^{-3}$. За время импульса не было замечено влияния продуктов реакций, инициируемых электрическим разрядом, на выходные параметры лазера. В работах [8, 9] исследовались режимы работы непрерывного электроразрядного генератора атомов иода в вихревом потоке газа. Была достигнута концентрация атомов иода до 10^{16} см^{-3} при давлении газа-носителя аргона до 30 Тор [9] и температуре газа на выходе из генератора около 500 К [8].

В традиционных установках ХКИЛ давление газа в иодном потоке $p \geq 20$ Тор, а температура газа T поддерживается вблизи 320–330 К, чтобы избежать конденсации паров иода на стенках тракта доставки и узла смешения газов [1, 10–14]. Большая температура в иодном потоке нежелательна, т. к. с ростом температуры активной среды лазера падает эффективность преобразования запасенной в синглетном кислороде энергии в лазерное излучение. Таким образом, на выходе генератора атомов иода параметры потока должны быть следующими: общее давление газа $p > 20$ Тор, концентрация атомов иода $N_I \geq 10^{16} \text{ см}^{-3}$ и температура газа $T \leq 350$ К. Чем выше давление газа в иодном потоке, тем более эффективные системы смешения газов могут быть использованы. Однако рост давления ограничивается двумя факторами. Во-первых, с увеличением давления разряд становится неустойчивым и, во-вторых, растет скорость гомогенной рекомбинации атомов иода как в разрядной зоне, так и в тракте транспортировки от генератора атомов иода до места инъекции иодного потока в активную среду лазера. Соотношение концентраций атомов и молекул иода на выходе разрядного устройства зависит от его параметров и заранее не известно. Кроме того, за время доставки иода до места его смешения с синглетным кислородом атомы иода успевают частично рекомбинировать. Скорость рекомбинации сильно зависит от температуры газа-носителя, которая изменяется за время доставки атомов от разряда до активной среды. Таким образом, для получения достоверных данных о концентрациях I_2 в потоке газа-носителя необходимы экспериментальные измерения. Целью данной работы являлось экспериментальное определение концентраций I_2 в продуктах электроразрядного генератора атомов иода.

2. Эксперимент

В экспериментах использовался электроразрядный генератор атомов иода на основе тлеющего разряда постоянного тока с коаксиальными электродами [9], позволяющий получать концентрации атомов иода до 10^{16} см^{-3} при давлении газа-носителя Аг до 30 Тор. Донором атомарного иода служил метилиодид CH_3I , который эффективно диссоциирует в разряде; примеры его успешного использования в похожих экспериментальных условиях представлены в [15, 16].

Для измерения концентраций I_2 после зоны разряда и вниз по потоку газа-носителя был разработан и использован в эксперименте метод измерения концентрации молекулярного иода на основе лазерно-индуцированной флуоресценции (ЛИФ) в парах I_2 , которая возбуждалась второй гармоникой непрерывного Nd-лазера на длине волны 532 нм. Метод позволяет измерять концентрации I_2 , характерные для активной среды кислородно-иодного лазера, в диапазоне от $\sim 10^{13} \text{ см}^{-3}$, при этом размер области измерения составляет единицы миллиметров.

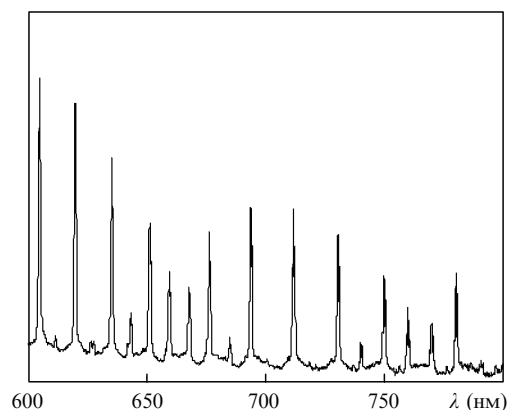


Рис.1. Спектр ЛИФ молекул I_2 с разрешением 0.4 нм.

Источником излучения служил непрерывный Nd:YAG-лазер WL-LAG532-5 с диодной накачкой и удвоением частоты. Как показали эксперименты, ширина спектра лазерного излучения была меньше, чем спектральное расстояние между линиями вращательных переходов молекулы I_2 , поэтому для получения ЛИФ необходимо было обеспечить перестройку частоты лазера. Оказалось, что этого можно достичь, изменяя в небольших пределах температуру корпуса лазера.

Для изменения температуры было использовано устройство, состоящее из холодильника Пельтье, омического нагревателя, термодатчика и электронного блока управления температурой. Как показали эксперименты, наиболее надёжно концентрации I_2 измерялись при изменении температуры примерно на 1°C за время ~ 30 с (а не при попытках точной стабилизации температуры); при этом наблюдался максимум сигнала ЛИФ, соответствующий моменту совпадения частоты излучения лазера с центром частоты одного из вращательных переходов молекулы I_2 . На рис.1 показан типичный спектр ЛИФ, снятый с разрешением 0.4 нм в диапазоне длин волн 600–800 нм с использованием спектрометра AvaSpec 3648.

Концентрации I_2 измерялись в проточной камере, находящейся за иодными инжекторами грабельного или струйного типа. Схема экспериментальной установки показана на рис.2, параметры проточной камеры подробно описаны в работах [17, 18]. Иод нарабатывался с помощью электроразрядного генератора с коаксиальными электродами [9, 17]. Давление газа-носителя Аг в генераторе атомов иода и в тракте транспортировки составляло 20 Тор, расход газа через генератор был равен 2.5 ммоль/с, ток разряда – 1.2 А. Напряжение разряда при этом изменялось от 290 до 350 В и зависело от расхода

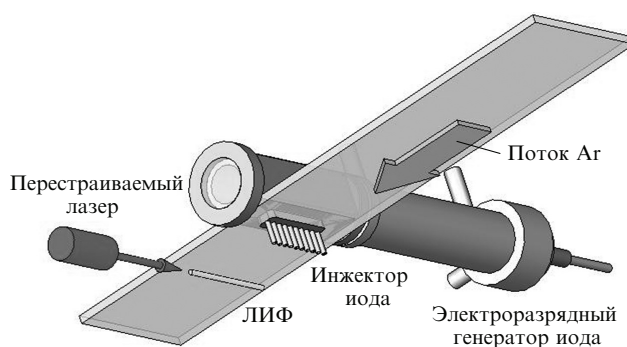


Рис.2. Схема измерения концентрации I_2 в проточной камере за иодным инжектором.

CH_3I через электроразрядный генератор практически линейно.

Калибровка производилась с использованием известных концентраций I_2 , измеренных по поглощению излучения на длине волны 495 нм в ячейке длиной 50 см. Температуры ячейки и омывающей электроды воды поддерживались равными 320 К. Необходимо учесть, что на погрешность измерения концентрации I_2 может повлиять различие в температурах газа при выключенном и включенном разряде. Интенсивность сигнала ЛИФ падает с увеличением температуры из-за уменьшения населенности нулевого колебательного уровня молекул I_2 , доплеровского уширения линии поглощения и уменьшения плотности газа. Нагрев газа ΔT в разрядной зоне из-за интенсивного теплообмена со стенками был незначительным и не превышал ~ 30 К. Численное моделирование, выполненное с помощью пакета Comsol, показало, что при времени транспортировки 6 мс средняя температура потока вследствие его теплообмена со стенками тракта больше температуры стенок всего на $\Delta T \approx 5$ К и поэтому погрешность в измерениях концентрации I_2 с использованием метода ЛИФ не превышает 10 %.

Для исключения влияния рассеянного излучения от возбуждающего флуоресценцию лазерного источника, сигнал ЛИФ регистрировался монохроматором МДР-6, настроенным на длину волны $\lambda = 580$ нм с полосой пропускания $\Delta\lambda = 10$ нм. Переизлучаемый молекулами иода свет на переходе $\text{I}_2(\text{B}-\text{X})$ транспортировался на вход монохроматора по оптоволокну. Световой поток на выходе монохроматора регистрировался ФЭУ-696. Электрический сигнал с выхода фотоумножителя усиливался прецизионным усилителем У-7-1 с полосой пропускания 0–1000 Гц. Излучение лазера модулировалось механическим прерывателем с частотой ~ 100 Гц. Сбор данных проводился с помощью платы АЦП National Instruments. Последующая цифровая обработка сигнала осуществлялась с помощью персонального компьютера. Экспериментально было установлено, что молекулы CH_3I при концентрациях, характерных для условий экспериментов, не оказывают влияния на сигнал ЛИФ.

На рис.3 показаны зависимости амплитуды сигнала ЛИФ от расходов I_2 (при включенном разряде) и CH_3I через разрядный генератор для струйного инжектора. В

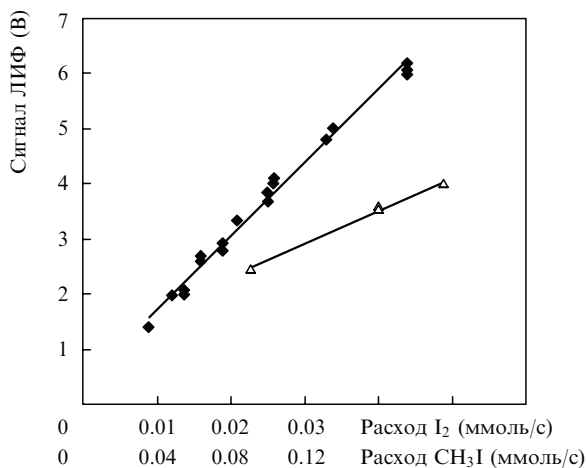


Рис.3. Зависимости амплитуды сигнала ЛИФ молекул I_2 от расхода I_2 (●) и расхода CH_3I (△) через разрядный генератор для струйного инжектора при давлении в генераторе 20 Тор и токе разряда 1.2 А; степень диссоциации CH_3I равна ~ 50 %.

этом цикле измерений вместо синглетного кислорода в проточную камеру подавался Ag (расход 2.5 ммоль/с). Степень диссоциации η метилиодида в разряде оценивалась из результатов предыдущих экспериментов [17] и составляла ~ 50 %. Если бы все атомы иода прорекомбинировали, то при этих допущениях зависимость для CH_3I на рис.3 совпала бы с зависимостью для I_2 . Измерения показали, что при условиях, характерных для активной кислородно-иодной среды, в зависимости от расхода CH_3I после грабельного инжектора содержание атомов иода в потоке иода ($[\text{I}]/[\text{I}] + 2[\text{I}_2]$) составляло 20 %–40 %, а после струйного – 30 %–50 %.

Рекомбинация атомов иода происходила в разрядной камере, в тракте транспортировки и в иодном инжекторе. Чтобы определить вклад каждого из этих участков в рекомбинацию атомов, были измерены концентрации I_2 вдоль газового потока при давлении 20 Тор – таком же, как и в разрядной камере. В этих экспериментах непосредственно за разрядной частью генератора атомов иода устанавливалась стальная цилиндрическая трубка с внутренним диаметром 1.5 см, подогреваемая омическими нагревателями.

В разных местах трубки вдоль потока газа-носителя устанавливалась диафрагма с отверстиями, обеспечивавшая нужный расход. За диафрагмой на расстоянии 5 см помещалась вставка из плексигласа, в которой возбуждалась и наблюдалась ЛИФ. Давление за диафрагмой в точке наблюдения ЛИФ составляло 2–3 Тор, и возможной рекомбинацией атомов иода на участке с низким давлением пренебрегали.

Результаты измерений для трёх положений диафрагмы показаны на рис.4. При минимальном начальном расходе CH_3I ($G_{\text{CH}_3\text{I}} = 0.04$ ммоль/с) расход I_2 одинаков для всех трех времен транспортировки газа ($\tau_{\text{tr}} = 3.1, 9.1$ и 13.4 мс). Это означает, что практически все образовавшиеся в разрядной зоне атомы иода прорекомбинировали. Время пребывания газа в разрядной зоне составляло 6 мс. Видно, что в зависимости расхода I_2 от расхода CH_3I во всех случаях имеется максимум, причём с увеличением времени транспортировки газа он сдвигается в область больших расходов CH_3I . По-видимому, этот эффект связан с ростом температуры газа-носителя и с изменением параметров плазмы при увеличении расхода CH_3I . Дей-

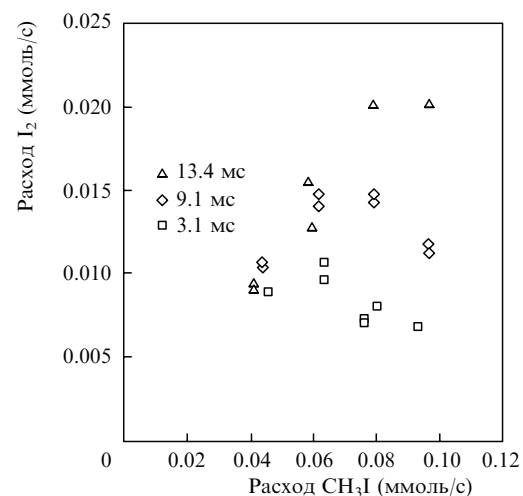


Рис.4. Зависимости расхода I_2 от расхода CH_3I для разных положений диафрагмы, соответствующих разным временам транспортировки иода.

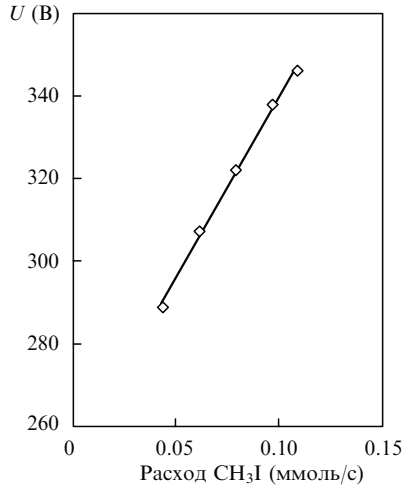
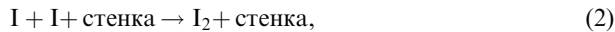


Рис. 5. Зависимость напряжения разряда U от расхода CH_3I при постоянном токе разряда 1.2 А.

ствительно, как показано на рис. 5, напряжение разряда U при постоянном токе разряда $I = 1.2$ А растет с увеличением расхода CH_3I линейно, а напряжение U_0 в отсутствие CH_3I составляет ~ 250 В.

Величина $\eta G_{\text{CH}_3\text{I}} q_b / (UI)$, т. е. доля мощности разряда, идущая на диссоциацию молекул CH_3I , в условиях эксперимента остаётся практически постоянной и равной $\sim 3\%$ (q_b – энергия связи С–I (234 кДж/моль)). С увеличением напряжения разряда параметры плазмы изменяются так, что доля атомов иода в газе увеличивается.

Результаты измерений сопоставлялись с одномерным численным моделированием процесса рекомбинации атомов иода в тракте транспортировки в реакциях



где $\text{M} = \text{Ar}$, CH_3I и I_2 при температуре 350 К и давлении аргона 20 Тор. В расчетах использовались следующие зависимости констант скоростей трехчастичных процессов (1), измеряемых в $\text{см}^6/\text{с}$, от температуры, взятые из работ [19, 20, 21] соответственно:

$$K_{\text{Ar}}(T) = \frac{10^{9.439-2.418L+1.911L^2}}{6.02^2} \times 10^{-40}, \quad L = (T/300),$$

$$K_{\text{CH}_3\text{I}} = \frac{10^{15.36} e^{1283/T}}{(6.02 \times 10^{23})^2},$$

$$K_{\text{I}_2}(T) = \frac{10^{10.65} T^{1.5} e^{2677/T}}{(6.02 \times 10^{23})^2}.$$

Вероятность рекомбинации атомов иода на стенке (реакция (2)) считалась равной 0.001 [22, 23].

Массоперенос атомов иода к стенкам и их рекомбинация описывались так же, как и в работе [23]. В условиях наших экспериментов вклад гетерогенной рекомбинации (2) во время транспортировки оказался малым. Экспериментальные точки на рис. 6 получены при $G_{\text{CH}_3\text{I}} = 0.08$ ммоль/с. Наилучшее совпадение расчетных и экспериментальных значений концентраций I_2 было достигнуто при $T = 350$ К и следующих начальных концентрациях компонентов: $[\text{CH}_3\text{I}] = 1.4 \times 10^{16} \text{ см}^{-3}$, $[\text{I}] = 7.8 \times 10^{15} \text{ см}^{-3}$, $[\text{I}_2] = 8 \times 10^{14} \text{ см}^{-3}$.

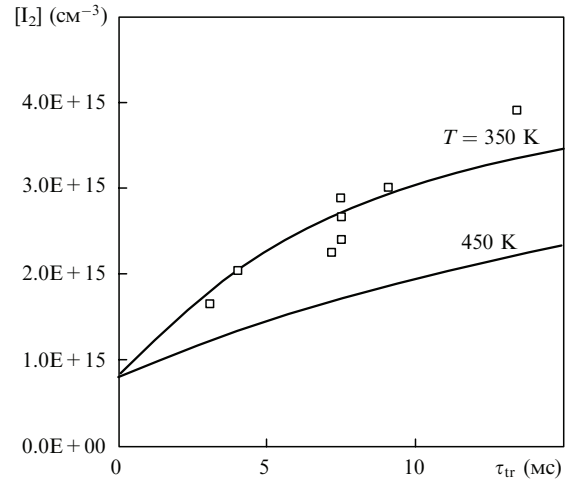


Рис. 6. Полученные в результате расчёта (кривые) и экспериментально измеренные (точки) концентрации I_2 при $G_{\text{CH}_3\text{I}} = 0.08$ ммоль/с.

Расчетные кривые на рис. 6 иллюстрируют влияние температуры газа на скорость рекомбинации иода в транспортирующем объеме. Видно, что через 10 мс после разряда доля атомов иода при 350 К падает с $\sim 90\%$ до 35%, при 450 К – только до 60%.

3. Выводы

Генератор атомов иода на основе тлеющего разряда с коаксиальными электродами, использующий CH_3I в качестве доноров атомов иода, позволяет нарабатывать атомы иода с концентрациями до $\sim 10^{16} \text{ см}^{-3}$ при давлении Ag в разрядной зоне вплоть до 20 Тор. Степень диссоциации CH_3I составляет $\sim 50\%$. Измерения концентрации I_2 с помощью ЛИФ показали, что на выходе электроразрядного генератора доля атомарного иода в парах иода зависит от расхода метилиодида. С ростом расхода метилиодида эта доля увеличивается.

В оптимальных режимах работы доля атомов в иодном потоке на выходе из генератора составляла 80% – 90%. Это достигалось при $G_{\text{CH}_3\text{I}} \approx 0.1 - 0.2$ ммоль/с и температуре омывающей электроды воды 330 К. Тем не менее в силу конструктивных особенностей установки поток иода в месте инъекции в синглетный кислород в зависимости от типа инжектора и расхода CH_3I только на 20% – 50% состоял из атомарного иода, а на 50% – 80% – из молекулярного. Атомы иода успевали в значительной степени прорекомбинировать как за время транспортировки (~ 6 мс), так и за время пребывания в инжекторе грабельного типа. Поэтому электроразрядный генератор и система транспортировки должны быть сконструированы таким образом, чтобы поток иода впрыскивался в поток синглетного кислорода сразу же после разряда.

При постоянном токе разряда рост его напряжения с увеличением расхода CH_3I происходит линейно, так что доля вложенной энергии, расходуемой на диссоциацию молекулы CH_3I , остаётся постоянной. Достигнутая общая эффективность вложения энергии разряда в диссоциацию иодида не превышала 3%. Исследования электроразрядных генераторов атомов иода находятся пока на начальной стадии, и можно надеяться, что в ходе дальнейшей работы их энергетическая эффективность будет повышена.

Использование генератора атомов иода в ХКИЛ позволяет увеличивать время жизни инверсии в активной среде [17], что важно в случае применения в ХКИЛ эффективных резонаторных схем, требующих протяженной зоны активной среды вдоль по потоку. В настоящее время это достигается за счет увеличения линейной скорости газового потока в резонаторе. По этой причине в качестве разбавителя в сверхзвуковых ХКИЛ используется легкий, но дорогостоящий газ – гелий [24]. Однако в схемах ХКИЛ, использующих генераторы атомов иода, а в качестве разбавителя – дешевые газы (азот [10, 11, 13, 14] или углекислый газ [12]), также могут быть получены приемлемые протяженности активной среды вдоль по потоку.

Работа выполнена при поддержке РФФИ (грант № 08-0212035 оф) и Губернского гранта № 266 от 27.08.08.

1. Адаменков А.А., Бакшин В.В., Богачев А.В. и др. *Квантовая электроника*, **37**, 601 (2007).
2. Carroll D. L., Solomon W.C., King D., et al. *Proc. of the International Conference on Lasers'99* (McLean, VA: STS Press, 2000, p. 69).
3. Endo M., Sugimoto D., Okamoto H., et al. *Jpn. J. Appl. Phys.*, **39**, 468 (2000).
4. Wakazono T., Hashimoto K., Takemoto T. *Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng.*, **3574**, 290 (1998).
5. Katz A., Dahan Z., Rybalkin V., Waichman K., Barmashenko V., Rosenwaks S. *Appl. Phys. Lett.*, **90**, 161122 (2007).
6. Вагин Н.П., Пазюк В.С., Юрышев Н.Н. *Квантовая электроника*, **22**, 776 (1995).
7. Вагин Н.П., Юрышев Н.Н. *Квантовая электроника*, **31**, 127 (2001).
8. Михеев П.А., Шепеленко А.А., Воронов А.И., Купряев Н.В. *Квантовая электроника*, **32**, 1 (2002).
9. Mikheyev P.A., Shepelenko A.A., Voronov A., et al. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **37**, 3202 (2004).
10. Загидуллин М.В., Николаев В.Д., Свистун М.И., Хватов Н.А. *Квантовая электроника*, **35**, 907 (2005).
11. Rybalkin V., Katz A., Barmashenko V.D., Rosenwaks S. *Appl. Phys. Lett.*, **85**, 5851 (2004).
12. Antonov I.O., Azyazov V.N., Mezhenin A.V., Popkov G.N., Ufimtsev N.I. *Appl. Phys. Lett.*, **89**, 051115 (2006).
13. Yang T.T., Bhowmik A., Burde D., et al. *Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng.*, **4760**, 537 (2002).
14. Аязов В.Н., Антонов И.О., Пичугин С.Ю., Сафонов В.С., Свистун М.И., Уфимцев Н.И. *Квантовая электроника*, **33**, 811 (2003).
15. Балан Н.Ф., Гизатуллин Р.М., Дубровский А.В. и др. *Квантовая электроника*, **16**, 1587 (1989).
16. Вагин Н.П., Золотарёв В.А., Крюков П.Г. и др. *Квантовая электроника*, **18**, 33 (1991).
17. Mikheyev P.A., Azyazov V.N., Mezhenin A.V., et al. *Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng.*, **6346**, 63460J (2007).
18. Azyazov V.N., Heaven M.C. *AIAA J.*, **44**, 1593 (2006).
19. Ip J.K.K., Burns G.J. *Chem. Phys.*, **56**, 3155 (1972).
20. Engelman R.Jr., Davidson N.R. *J. Am. Chem. Soc.*, **82**, 4770 (1960).
21. Bunker D.L., Davidson N. *J. Am. Chem. Soc.*, **80**, 5090 (1958).
22. Hays G.N., Fisk G.A. *IEEE J. Quantum Electron.*, **17**, 1823 (1981).
23. Аязов В.Н. *Квантовая электроника*, **21**, 25 (1994).
24. McDermott W.E., Stephens J.C., Vetrovec J., Dickerson R.A. *AIAA Paper № 97-2385* (1997).