

Импульсный химический кислородно-иодный лазер, инициируемый поперечным электрическим разрядом

Н.П.Вагин, Н.Н.Юрьшев

Исследован импульсный химический кислородно-иодный лазер с объемной генерацией атомов иода в импульсном поперечном электрическом разряде. Показано, что увеличение парциального давления кислорода приводит к росту энергии импульса при сохранении его длительности. В то же время увеличение давления иодида и энергии разряда уменьшает длительность импульса. Получены импульсы длительностью 6.5 нс, что соответствует концентрации атомов иода $1.8 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-3}$, близкой к максимальной, достигнутой в исследованиях как непрерывных, так и импульсных кислородно-иодных лазеров. Реализованы удельный энергозъем 0.9 Дж/л и удельная мощность 75 кВт/л. Показаны пути увеличения этих параметров. Установлено, что SF_6 является эффективным буферным газом, способствующим повышению энергетических параметров импульса.

Ключевые слова: химический кислородно-иодный лазер, поперечный электрический разряд, синглетный кислород.

Введение

В настоящее время химический кислородно-иодный лазер (КИЛ) рассматривается как потенциальный кандидат для применения в промышленности. Высокая мощность излучения на длине волны 1.315 мкм, соответствующей малым потерям кварцевых оптических волокон, делает этот лазер перспективным для использования в ситуациях, когда требуется доставить излучение в опасные и труднодоступные зоны, например для демонтажа отработавших ядерных реакторов [1].

Под технологическим КИЛ обычно подразумевают лазер, работающий в непрерывном режиме. Наличие импульсного режима позволило бы расширить область применения лазера, особенно для процессов, в которых мощность является определяющим параметром (резка материалов, сверление, преобразование частоты в нелинейных процессах и т. д.). Говоря об импульсном режиме, будем иметь в виду возможность достижения как можно более высокой импульсной мощности. Для этого необходимо создать активную среду с максимально большим энергозапасом и затем извлечь запасенную энергию за минимальное время.

Существуют два подхода к реализации импульсного режима работы КИЛ. Первый подход включает в себя различные способы модуляции усиления (потерь) или синхронизации мод непрерывного КИЛ. При этом используется активная среда, получаемая смешением синглетного кислорода с молекулярным иодом. Наличие быстрых релаксационных процессов в этом случае делает невозможным формирование активной среды большого объема. Легко показать [2], что отношение импульсной мощности W_p к мощности непрерывного режима W_{cw} при таком подходе имеет предел:

$$\frac{W_p}{W_{cw}} = \frac{K_f [I] L}{v}, \quad (1)$$

где K_f – константа скорости передачи энергии от возбужденной молекулы кислорода $O_2(^1D)$ к атому иода; $[I]$ – концентрация атомов иода; L – длина резонатора в направлении потока; v – скорость потока. Экспериментально достигнутый предел равен ~ 16 [3].

Второй подход предполагает формирование активной среды большого размера при использовании относительно стабильной смеси на стадии заполнения рабочего объема. Это может быть сделано путем замены молекулярного иода на иодид, не диссоциирующий при смешении с синглетным кислородом. Необходимые для работы КИЛ атомы иода получают в результате импульсного разложения иодида с выделением атомов иода. Для этой цели может быть использован фотолиз [4], электрический разряд [5], радиолиз или электронный пучок. Этот метод объемной генерации атомов иода позволяет формировать активную среду протяженностью ~ 1 м при давлении кислорода несколько торр.

Образованные атомы иода преобразуют запасенную в активной среде энергию в энергию лазерного излучения за время

$$\tau_p \approx \frac{1}{K_f [I]}. \quad (2)$$

Выходная энергия лазера определяется только энергозапасом активной среды и при одной и той же концентрации синглетного кислорода остается постоянной, тогда как время извлечения энергии обратно пропорционально создаваемой концентрации атомов иода. Таким образом, увеличивая концентрацию атомов иода, можно увеличивать мощность импульса (и коэффициент усиления).

Использование фотолиза для получения атомов иода из алкилиодида CH_3I позволило достичь удельного энергозъема 3.3 Дж/л при давлении кислорода 3 Торр и содержании синглетного кислорода 40%. Приведенный

удельный энергосъем соответствует эффективности экстракции энергии 90 % и химической эффективности лазера 23 %. Химическая эффективность 36 % была достигнута при меньшем давлении кислорода и, следовательно, более высоком содержании синглетного кислорода. Такая высокая химическая эффективность обусловлена, в частности, отсутствием химической диссоциации молекулярного иода и связанных с ней потерь синглетного кислорода.

Длительность импульса генерации могла изменяться в диапазоне 15–500 мкс при практически постоянной энергии импульса. Импульсная мощность 300 кВт была получена с активного объема 1.4 л. Таким образом, продемонстрирована возможность формирования активной среды протяженностью ~ 1 м в направлении потока при давлении кислорода до 3 Тор, что позволило получить импульсную мощность, на три порядка превышающую мощность в непрерывном режиме при том же расходе реагентов.

Фотолиз является очень удобным инструментом для получения атомов иода в силу высокой селективности воздействия. Однако он не лишен недостатков, главные из которых – низкая частота следования импульсов в импульсно-периодическом режиме и эффективность. Электрический разряд позволяет работать с частотами следования импульсов в килогерцевом диапазоне. Однако *ab initio* было неясно, может ли электрический разряд осуществлять генерацию атомов иода, не приводя в то же время к заметному тушению синглетного кислорода. Проведенные эксперименты доказали эффективность использования продольного электрического разряда для этой цели. Удельная энергия 1 Дж/л была получена при давлении кислорода 2 Тор. Электрическая эффективность лазера (отношение выходной энергии лазера к электрической энергии, запасенной в конденсаторе) составила 91 % [6]. Нами была продемонстрирована работа КИЛ в импульсно-периодическом режиме с частотой до 20 Гц, причем частота следования импульсов лимитировалась мощностью источника питания.

Удельная энергия, достигнутая при использовании разряда, уступает достигнутой при использовании фотолиза. Возможными причинами этого различия могут быть как тушение синглетного кислорода электронами и фрагментами диссоциации компонентов смеси, так и нагрев активной среды за счет большей подводимой энергии, необходимой для получения атома иода. Энергия УФ кванта, вызывающего диссоциацию иодида, составляет 5 эВ. Полагая, что вся энергия, запасенная в конденсаторах, вкладывается в активную среду, можно оценить энергетическую «стоимость» атома иода, получаемого в разряде. В условиях эксперимента эта «стоимость» составила 25 эВ.

Успешная работа импульсного химического КИЛ с объемной генерацией атомов иода в продольном электрическом разряде стимулировала исследования возможности применения поперечного разряда для этой цели. Разряд этого типа позволяет работать при повышенных давлениях кислорода, обеспечиваемых современными генераторами синглетного кислорода (ГСК), например струйными, что позволяет надеяться на увеличение удельного энергосъема. Однако переход к поперечному разряду в КИЛ, работающем при относительно низком давлении, встречает трудности, которые связаны с согласованием разряда с системой импульсного питания.

1. Эксперимент

Известны различные схемы организации поперечного разряда для иницирования газовых лазеров высокого давления (CO_2 -лазеров, эксимерных лазеров). Практически во всех схемах применяется предыонизация с помощью электронного пучка или УФ излучения.

В последнее время достигнуты заметные успехи в иницировании нецепного HF-лазера поперечным разрядом при использовании системы электродов с высокой краевой неоднородностью и отсутствии предыонизации [7]. Однородный объемный разряд получался в смеси состава $\text{SF}_6 : \text{C}_2\text{H}_6 = 20 : 1$ при общем давлении 60 Тор. Активный объем разрядной камеры составлял 50 л при расстоянии между электродами 27 см. Механизм образования однородного объемного разряда, предлагаемый в [7], позволял надеяться на получение аналогичных результатов и в случае импульсного КИЛ. Действительно, как и в HF-лазере, активная среда импульсного КИЛ содержит электроотрицательный компонент – кислород и легкоионизируемый (но электроотрицательный) компонент – RI. Заметим, что потенциалы ионизации CH_3I (9.5 эВ) и CF_3I (10.2 эВ) меньше, чем потенциал ионизации C_2H_6 . Кроме того, низкое рабочее давление КИЛ представлялось более предпочтительным для получения однородного разряда.

К сожалению, все наши попытки получить однородный разряд в активной среде КИЛ с применением описанной электродной системы окончились неудачей. Несмотря на это, мы надеемся на перспективность указанного подхода при переходе к более высоким давлениям и расстояниям между электродами.

Все лазерные эксперименты были выполнены при использовании острейного катода с резистивной стабилизацией разряда. Ранее эта разрядная камера применялась для иницирования нецепного HF-лазера. В качестве катода использовалась сборка из 120 сопротивлений (2.5 кОм каждое) марки ТВО-2. Длина катода составляла 19 см, расстояние между электродами – 1.8 см, активный объем лазерной кюветы – 52 см³. Напряжение до 18 кВ на разрядный промежуток подавалось от конденсаторов емкостью 3.4–20.4 нФ через тиратрон ТГИ1-16/500.

Синглетный кислород получался в химическом генераторе барботажного типа, представляющем собой кварцевый цилиндр с внутренним диаметром 140 мм и длиной 230 мм, через перфорированное дно которого в генератор подавался молекулярный хлор из мягкого мешка емкостью 5 л, изготовленного из полиэтиленовой пленки. Использование такого мешка позволяло с высокой точностью поддерживать давление на входе в газовую систему равным атмосферному и, тем самым, стабилизировать расход хлора.

Для интенсификации массообмена генератор заполнялся насадкой из тефлоновых колец Рашига размером 12 × 12 × 1.5 мм. Высота насадки равнялась 130 мм. Типичный рабочий состав приготавливался смешением 750 мл 50 %-ной перекиси водорода и 400 мл 50 %-ного водного раствора КОН. Начальная температура рабочего раствора составляла –20°С и повышалась в процессе пуска. Длительность пуска обычно равнялась 10–20 с. После каждого пуска рабочий раствор охлаждался до начальной температуры.

Иодид CH_3I подавался из сосуда емкостью 8 л, изготовленного из нержавеющей стали, в который залива-

лось 100 мл жидкого алкилиодида. Перфторалкилиодид CF_3I , имеющий высокое давление насыщенных паров, подавался напрямую из баллона. Буферные газы He , N_2 , Ar , SF_6 подмешивались к хлору перед ГСК. Это позволяло снизить парциальное давление хлора в ГСК и таким образом увеличить содержание синглетного кислорода в газовом потоке.

Газовый поток из ГСК транспортировался в лазерную кювету по кварцевой трубе диаметром 50 мм. Датчик давления, инжектор иодида и входное отверстие лазерной кюветы находились на расстоянии 500, 640 и 800 мм от ГСК соответственно. Газовый поток входил в среднюю часть Т-образной оптической кюветы и откачивался через ее концы, на которых располагались узлы крепления зеркал. Полная длина оптической кюветы составляла 1600 мм и равнялась длине резонатора при использовании внутренних зеркал. Разрядная камера вставлялась в одно из плеч оптической кюветы, ранее применявшейся в экспериментах с импульсным КИЛ в продольной геометрии [6]. Временные параметры лазерной генерации регистрировались с помощью Ge-фотодиода с интегрирующей сферой, выходная энергия измерялась калориметром ИМО-2Н.

2. Экспериментальные результаты

В настоящей работе исследовалось влияние на энергетические параметры лазера условий эксперимента: энергии разряда, приложенного напряжения, давления кислорода, сорта и давления буферного газа. Все эксперименты выполнены с резонатором, образованным полностью отражающим зеркалом и зеркалом с пропусканием 4.5%. Это значение пропускания выбрано на основании предварительного исследования по оптимизации резонатора.

Как следует из принципа работы КИЛ, синглетный кислород является источником энергии лазера, поэтому давление кислорода в активной среде и содержание синглетного кислорода определяют выходную энергию лазера. На рис.1 показаны осциллограммы импульсов генерации при различных давлениях кислорода. Можно видеть, что временные параметры генерации – длительность импульса и время задержки начала генерации – не зависят от давления кислорода. Это значит, что концентрация атомов иода, создаваемых разрядом, остается практически постоянной.

Таким образом, вложение энергии в активную среду лазера определяется, главным образом, буферным газом, парциальное давление которого заметно превышает

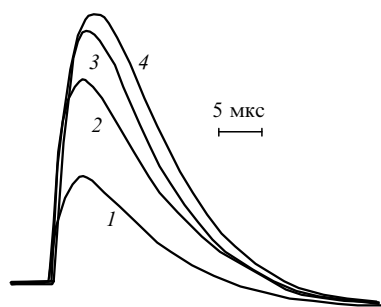


Рис.1. Импульсы генерации КИЛ при энергии накачки 2.2 Дж, давлениях $p_{\text{N}_2} = 9$ Тор, $p_{\text{CH}_3\text{I}} = 0.5$ Тор, $p_{\text{O}_2} = 0.5$ (1), 1.0 (2), 1.6 (3) и 2.0 Тор (4).

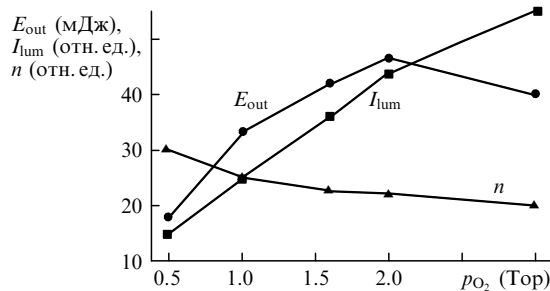


Рис.2. Зависимости выходной энергии E_{out} , интенсивности люминесценции синглетного кислорода I_{lum} и содержания синглетного кислорода n от давления кислорода p_{O_2} при энергии накачки 2.2 Дж, $p_{\text{N}_2} = 9$ Тор, $p_{\text{CH}_3\text{I}} = 0.5$ Тор.

давление кислорода. В отличие от длительности импульса выходная энергия лазера является функцией давления кислорода (рис.2). Численная модель такого лазера предсказывает, по крайней мере для исследованного диапазона давлений, линейную зависимость выходной энергии от давления кислорода при постоянном содержании синглетного кислорода. Однако, как видно из рис.2, интенсивность люминесценции не растет линейно с ростом давления свыше 1.5–2.0 Тор, что свидетельствует о снижении содержания синглетного кислорода и объясняет отклонение E_{out} от линейной зависимости. Такое поведение является типичным для ГСК барботажного типа, в котором сильная зависимость содержания синглетного кислорода от давления наблюдается даже в области низких давлений (~ 1 Тор). Существенного роста удельного энергосъема следует ожидать при переходе к струйным ГСК, в которых влияние рабочего давления на содержание синглетного кислорода не столь велико [8].

Из соотношения (2) следует, что уменьшение длительности импульса генерации требует повышения концентрации атомов иода в активной среде. Это может быть достигнуто как увеличением концентрации иодида при постоянной степени диссоциации, так и увеличением степени диссоциации, т. е. ростом энерговозложения в активную среду. Отметим, что в первом случае возникают трудности, связанные с обеспечением высокого парциального давления иодида, обусловленного низким давлением насыщенных паров типичных алкилиодидов.

В работе исследовались иодиды CF_3I и CH_3I . На рис.3 приведены зависимости длительности импульса и времени задержки генерации относительно инициирующего разряда для указанных иодидов. Прежде всего обращает на себя внимание практически одинаковая эффективность обоих иодидов как доноров атомов иода, т. е. соз-

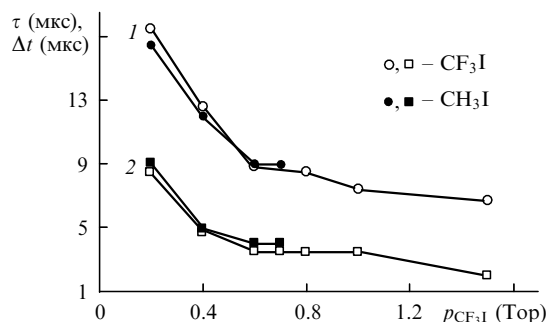


Рис.3. Зависимости длительности импульса τ (1) и времени задержки генерации Δt (2) от давления для иодидов CF_3I и CH_3I при энергии накачки 2.2 Дж, $p_{\text{N}_2} = 9$ Тор, $p_{\text{O}_2} = 1.0$ Тор.

даваемая разрядом концентрация атомов иода не зависит от сорта иодида. Это приводит к совпадению временных параметров импульсов генерации. В то же время энергетические параметры лазерных импульсов, получаемых при использовании разных иодидов, заметно различаются. Так, например, в одинаковых условиях эксперимента CH_3I обеспечивает почти на 25–40 % более высокую энергию импульса, чем CF_3I . Причиной указанного различия, как было показано в [9], является тушение синглетного кислорода радикалом RO_2 ($\text{R} = \text{CH}_3, \text{CF}_3$), образующимся после диссоциации иодида.

Соотношение (2) позволяет оценить возникающую при разряде концентрацию атомов иода и, следовательно, определить степень диссоциации иодида. Проведенный анализ показывает, что степень диссоциации падает с ростом давления иодида от 12 % при 0.2 Тор до 4 % при 1.5 Тор (энергия разряда 2.2 Дж, давление кислорода 1.0 Тор, давление азота 9 Тор). Отметим, что полученная по соотношению (2) концентрация атомов иода, соответствующая минимальной длительности импульса генерации 6.5 мкс, составляет $18 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-3}$, что близко к максимальной концентрации, достигнутой в химических КИЛ.

Как отмечалось выше, концентрация атомов иода, образуемых в активной среде, зависит от вкладываемой энергии. Действительно, увеличение запасенной в системе питания энергии до 3.3 Дж позволило уменьшить длительность импульса до 6.5 мкс. Изменение энергии разряда достигалось вариацией как зарядного напряжения, так и емкости системы питания. В исследованном диапазоне напряжений (10–18 кВ) и емкостей (3.4–20.4 нФ) не обнаружено заметного влияния этих параметров на выходную энергию лазера. При достаточном превышении порогового усиления энергия импульса остается практически постоянной.

В отличие от лазера с иницированием фотолизом, где роль буферного газа сводится к увеличению теплоемкости активной среды и, следовательно, к снижению рабочей температуры, что важно для работы химического КИЛ, в случае разрядного иницирования роль буферного газа заметно сложнее. Помимо влияния на теплоемкость активной среды, наличие буферного газа изменяет параметры плазмы, сопротивление разрядного промежутка и, следовательно, согласование разряда с источником питания. Действительно, увеличение давления активной среды увеличивает сопротивление разрядного промежутка и, таким образом, повышает энергозатраты, что приводит к уменьшению длительности импульса, т. е. повышению концентрации атомов иода.

Эффективность буферного газа с точки зрения энергетической зависит от его сорта. На рис.4 показаны зависимости выходной энергии лазера от парциального давления различных буферных газов p при энергии накачки 1.5 Дж, $p_{\text{CH}_3\text{I}} = 0.5 \text{ Тор}$, $p_{\text{O}_2} = 1.0 \text{ Тор}$.

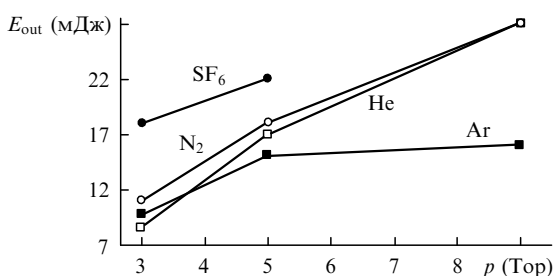
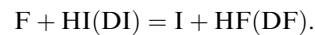


Рис.4. Зависимости выходной энергии лазера E_{out} от парциального давления различных буферных газов p при энергии накачки 1.5 Дж, $p_{\text{CH}_3\text{I}} = 0.5 \text{ Тор}$, $p_{\text{O}_2} = 1.0 \text{ Тор}$.

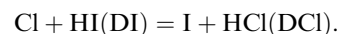
буферного газа для энергии накачки 1.5 Дж. Видно, что теплоемкость буферного газа не является единственной характеристикой, определяющей его эффективность. Действительно, для гелия и аргона, имеющих одинаковые теплоемкости, выходные энергии различны, причем соотношение эффективностей зависит от давления буферного газа. Использование азота представляется весьма привлекательным вследствие его высокой эффективности и низкой стоимости.

Обращает на себя внимание высокая эффективность гексафторида серы SF_6 . По сравнению с другими исследованными газами SF_6 обладает высокой теплоемкостью ($c_p = 97 \text{ Дж}/(\text{моль} \cdot \text{К})$ при 298 К [10]), почти втрое превышающей теплоемкость азота и впятеро – аргона. Кроме того, гексафторид серы диссоциирует в разряде, образуя атомы фтора. Эта особенность дает возможность дополнительной наработки атомов иода при использовании иодистого водорода вместо молекул алкил-иодидов в соответствии с реакцией



Таким образом, появляется возможность увеличения концентрации атомов иода за счет повышения вместо давления иодида давления SF_6 . Этот подход представляется более экономичным. Кроме того, из-за высоких давлений гексафторида серы рабочая смесь импульсного КИЛ приближается по своим свойствам к смесям HF-лазера на цепной реакции, что позволяет надеяться на реализацию разрядных схем, успешно зарекомендовавших себя в случае HF-лазеров [11]. К сожалению, экспериментально не удалось поднять парциальное давление гексафторида серы выше 7 Тор из-за недостаточной проводимости системы газоподачи.

При замене гексафторида серы на четыреххлористый углерод CCl_4 химическая генерация атомов иода может быть получена в результате реакции



Использование этой реакции представляется предпочтительным в связи с тем, что константа скорости тушения синглетного кислорода молекулами HCl меньше, чем таковая в случае тушения молекулами $\text{HF}(\text{DF})$ [12]:



При этом скорость тушения возбужденного иода молекулами галогеноводорода, как отмечено в [2], не является существенным фактором для работы лазера из-за высокой скорости передачи энергии от молекул синглетного кислорода к атомам иода.

Можно ожидать, что различные фреоны также смогут служить эффективными буферными газами. Это обстоятельство позволит выбрать разбавитель, обладающий наилучшими эксплуатационными свойствами. Очевидно, что все эти предположения нуждаются в экспериментальной проверке.

Заключение

Проведенное исследование импульсного химического КИЛ на основе ГСК барботажного типа с иницированием поперечным самостоятельным электрическим разрядом показало перспективность такого иницирования

для получения импульсов малой длительности. Достигнутая длительность импульса 6.5 нс на полувывоте соответствует концентрации атомов иода $1.8 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-3}$, создаваемой разрядом в активной среде лазера.

Генерация получена при суммарном давлении в резонаторе до 10 Тор и парциальном давлении кислорода до 2 Тор. Из экспериментальных результатов следует, что возможно дальнейшее увеличение рабочего давления. Показана высокая эффективность гексафторида серы в качестве буферного газа, что позволяет надеяться на дальнейшее увеличение концентрации атомов иода в результате химической наработки в реакции $F + \text{HI}(\text{DI}) = \text{I} + \text{HF}(\text{DF})$ при использовании $\text{HI}(\text{DI})$ в качестве донора иода. Реализация исследуемой схемы позволит создать импульсный химический КИЛ с параметрами, близкими к параметрам фотодиссоционного иодного лазера, однако с заметно более высокой электрической эффективностью и естественной для проточных лазеров возможностью работы в импульсно-периодическом режиме.

Работа выполнена при поддержке European Office of Aerospace Research and Development (EOARD) (контракт F61775-99-WE032).

1. Vetrovec J. *Proc. SPIE*, **3574**, 461 (1998).
2. Юрьшев Н.Н. *Квантовая электроника*, **23**, 583 (1996).
3. Highland R., Stowell P., Hager G. *Proc. SPIE*, **1225**, 512 (1990).
4. Басов Н.Г., Вагин Н.П. и др. *Квантовая электроника*, **11**, 1893 (1984).
5. Zhang Rongyao, Chen Fang et al. *Proc. SPIE*, **1031**, 308 (1989).
6. Вагин Н.П., Пазюк В.А., Юрьшев Н.Н. *Квантовая электроника*, **22**, 776 (1994).
7. Apollonov V.V., Firsov K.N., Kazantsev S.Yu., Oreshkin V.F. *Proc. SPIE*, **3574**, 374 (1998).
8. Аязов В.Н., Загидуллин В.М., Николаев В.Д., Свистун М.И., Хватов Н.А. *Квантовая электроника*, **21**, 129 (1994).
9. Yuryshv N. *Proc. SPIE*, **139**, 221 (1991).
10. *Физические величины. Справочник*. Под ред. И.С. Григорьева и Е.З. Мейлиховой (М., Энергоатомиздат, 1991).
11. Аполлонов В.В., Белевцев А.А., Казанцев С.Ю., Сайфуллин А.В., Фирсов К.Н. *Квантовая электроника*, **30**, 207 (2000).
12. Wayne R.P. *Singlet oxygen* (Cleveland, OH, CRC Press, 1984).