

Температурная зависимость ударного уширения линии ${}^2P_{1/2} - {}^2P_{3/2}$ атомарного иода

М.В.Загидуллин, В.Д.Николаев, М.И.Свистун, Н.А.Хватов

Методом диодной лазерной спектроскопии высокого разрешения определена температурная зависимость ударного уширения спектра линии перехода ${}^2P_{1/2} \rightarrow {}^2P_{3/2}$ атомарного иода в диапазоне 220–347 К. Показано, что ударная ширина в кислородно-азотной среде зависит от температуры как $(300\text{К}/T)^\gamma$, где $\gamma = 0.87 \pm 0.13$.

Ключевые слова: ударное уширение, атом иода, лазерная спектроскопия.

1. Введение

В связи с разработкой иодного фотодиссоционного лазера исследованию ударного уширения перехода ${}^2P_{1/2} \rightarrow {}^2P_{3/2}$ атомарного иода ранее уделялось достаточно большое внимание [1–5]. Измерения коэффициентов уширения этого перехода в различных средах проводились при температурах, близких к комнатным или выше. В работе [4] обратно пропорциональная зависимость ударного уширения от температуры наилучшим образом объясняла результаты измерений в диапазоне 300–1000 К. В сверхзвуковых химических кислородно-иодных лазерах (КИЛ) при давлении активной среды около 10 мм рт. ст и температуре ниже 200 К вклады ударного и доплеровского механизмов уширения становятся сравнимыми.

Метод диодной лазерной спектроскопии высокого разрешения значительно повысил точность сканирования спектральной линии ${}^2P_{1/2} \rightarrow {}^2P_{3/2}$ атомарного иода [6, 7]. В работе [7] методом диодной лазерной спектроскопии была прописана линия атома иода с разрешением 6 МГц и измерены коэффициенты ударного уширения перехода ${}^2P_{1/2} - {}^2P_{3/2}$ атомарного иода азотом, гелием и кислородом при температуре 300 К.

Спектр усиления (поглощения) $g(X)$ на сильнейшем переходе ${}^2P_{1/2}(F=3) \rightarrow {}^2P_{3/2}(F=4)$ атома иода при совместном действии доплеровского и ударного механизмов уширения описывается функцией Фойхта, являющейся сверткой гауссовой функции G с шириной по полувысоте W_D и лоренцевской функции L с шириной по полувысоте W_L :

$$g(X) = \Delta N \frac{A_{34}\lambda^2}{8\pi} L(X) * G(X) = \Delta N \frac{A_{34}\lambda^2}{8\pi} \Phi(X) \quad (1)$$

$$= \Delta N \frac{A_{34}\lambda^2}{8\pi} \left(\frac{\ln 2}{\pi} \right)^{1/2} \frac{W_L}{\pi W_D} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\exp(-Z^2 4 \ln 2 / W_D^2)}{(X-Z)^2 + (W_L/2)^2} dz,$$

где $\Phi(X)$ – функция Фойхта, интеграл которой по частоте нормирован на единицу; X – сдвиг частоты относительно центра линии перехода ${}^2P_{1/2}(F=3) \rightarrow {}^2P_{3/2}(F=4)$; ΔN – плотность инверсии на этом переходе; A_{34} – вероятность перехода; $\lambda = 1.315$ мкм – длина волны.

Гауссова составляющая в спектре линии усиления вызвана доплеровским механизмом уширения и имеет ширину W_D , которая в случае атома иода связана с температурой газового потока соотношением $W_D = 14.49\sqrt{T}$, где T – температура потока в кельвинах; W_D измеряется в мегагерцах. Лоренцевская составляющая в спектре линии усиления обусловлена ударным уширением, связанным с взаимодействием атома иода с газовыми компонентами. Ударная ширина пропорциональна парциальному давлению каждого газового компонента и аддитивна: $W_L = \sum \alpha_i p_i f_i(300\text{К}/T)$, где α_i – коэффициент ударно-го уширения для i -го газа при температуре 300 К; p_i – парциальное давление i -го газа; $f_i(1) = 1$.

Таким образом, коэффициент α_i есть параметр уширения при $T = 300$ К. Теория предсказывает рост функции $f_i(300\text{К}/T)$ с понижением температуры. Например, если возмущающая частица, находящаяся от атома на расстоянии R , приводит к сдвигу частоты перехода на $\Delta\nu = CR^{-6}$ (C – некоторая константа), то теория предсказывает температурную зависимость $f(300\text{К}/T) = (300\text{К}/T)^{0.7}$, а при сдвиге $\Delta\nu = CR^{-3}$ зависимость имеет вид $f(300\text{К}/T) = 300\text{К}/T$ [8]. Если сдвиг частоты перехода при взаимодействии атома иода с любым компонентом газа имеет одинаковую степенную зависимость от R , то ударную ширину можно представить в виде

$$W_L = f(300\text{К}/T) \sum \alpha_i p_i. \quad (2)$$

С учетом данного обстоятельства в настоящей работе определена температурная зависимость $f(300\text{К}/T)$ в диапазоне температур 220–340 К, характерном для активной среды КИЛ. Для получения низкотемпературной газовой среды, содержащей атомарный иод, используется метод приготовления холодной активной среды дозвукового КИЛ, в которой атомы иода образуются в результате диссоциации молекулярного иода в синглетном кислороде [9].

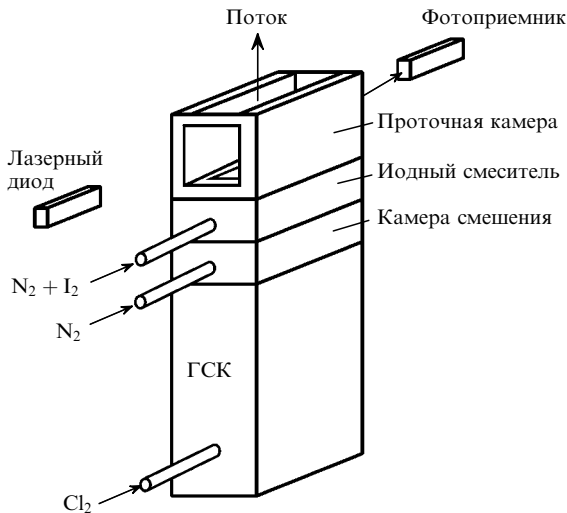


Рис.1. Схема установки для получения среды с атомарным иодом и ее диагностики перестраиваемым полупроводниковым лазером.

2. Эксперимент

В качестве среды, содержащей атомарный иод, была использована активная среда кислородно-иодного лазера, температура которой могла быть понижена до 220 К. Схема установки представлена на рис.1. Синглетный кислород $O_2(^1\Delta)$ образовывался в струйном генераторе синглетного кислорода (ГСК) при взаимодействии струй щелочного раствора перекиси водорода с потоком хлора. Подробно устройство и действие ГСК, а также проточная часть кислородно-иодного лазера описаны в [10]. Утилизация хлора в реакторе составляла 95 %.

Температура щелочного раствора перекиси водорода во всех пусках равнялась -16°C . В камере смешения к потоку кислорода подмешивался первичный азот, а затем к полученному потоку $O_2(^1\Delta) + N_2$ через иодный смеситель добавлялась смесь вторичного азота с парами молекулярного иода. В процессе смешения этих потоков происходила частичная диссоциация молекулярного иода на атомы, как и в КИЛ. Полученная смесь газов поступала в проточную камеру, в которой пучком перестраиваемого по частоте полупроводникового лазера осуществлялось сканирование линии усиления атома иода на переходе $^2P_{1/2}(F=3) \rightarrow ^2P_{3/2}(F=4)$.

Поперечное сечение проточной камеры для потока равнялось 50×28 мм, ее боковыми стенками служили оптические клинья, через которые вводился пучок полупроводникового лазера. Температура газового потока могла изменяться за счет нескольких факторов: температуры первичного азота, расхода первичного азота и расхода молекулярного иода.

Для получения низких температур газового потока первичный азот продувался через медную спираль, погруженную в сосуд с жидким азотом. Изменение расхода молекулярного иода ведет к изменению скорости тушения энергии, запасенной в $O_2(^1\Delta)$, а следовательно, и температуры потока. Газовая смесь откачивалась насосом с производительностью 125 л/с.

В этих условиях скорость газа в проточной камере была существенно дозвуковой. Давления измерялись с помощью датчиков «Сапфир». Погрешность измерения давления составляла порядка 1 %. Чтобы обеспечить достаточное усиление в крыльях спектра, где основной вклад в уширение вносит лоренцовская составляющая,

эксперименты проводились при давлении газового потока в проточной камере более 10 мм рт. ст. Только в этом случае удается надежно разделить вклады лоренцовской и гауссовой составляющих в спектре усиления.

Для сканирования спектра усиления (поглощения) атома иода на сильнейшем переходе $^2P_{1/2}(F=3) \rightarrow ^2P_{3/2}(F=4)$ использовался спектроскопический лазерный (диодный) комплекс высокого разрешения фирмы Physical Science Inc. (США), предоставленный Научно-исследовательской лабораторией ВВС США. Излучение сканирующего лазера направлялось в проточную камеру и принималось фотоприемником. Аппаратное и программное обеспечение комплекса позволяли регистрировать спектр поглощения в реальном режиме времени. Частота сканирующего лазера изменялась в пределах ± 1500 МГц относительно центра линии перехода $^2P_{1/2}(F=3) \rightarrow ^2P_{3/2}(F=4)$, начальный диаметр пучка сканирующего лазера составлял 3 мм. Спектральная форма линии излучения пробного лазера близка к лоренцовской с шириной линии $W_{\text{las}} \approx 8$ МГц.

3. Результаты

На рис.2 представлен спектр линии усиления при реализации в проточной камере условий для создания положительной инверсии на переходе $^2P_{1/2}(F=3) \rightarrow ^2P_{3/2}(F=4)$. В некоторых опытах изучались линии поглощения, возникающие тогда, когда за счет увеличения расхода иода происходило тушение $O_2(^1\Delta)$ и увеличивалась температура газового потока. В лоренцовскую составляющую функции Фойхта входит собственная ширина излучения пробного лазера $W_{\text{las}} \approx 8$ МГц, поэтому истинная ударная ширина определялась как $W_L = W_{L1} - W_{\text{las}}$, где W_{L1} – ширина лоренцовской составляющей в спектре усиления. При сравнимых величинах W_D и W_{L1} математическая обработка спектра усиления позволяет достаточно надежно выделить лоренцовскую и гауссову составляющие в спектре линии усиления, а затем определить W_D , W_{L1} и W_L .

В табл.1 приведены газодинамические условия экспериментов и результаты, полученные при математической обработке спектра усиления. Погрешность определения W_D и W_{L1} не превышала 2 и 4 % соответственно. Она связана с тем, что при наличии шумов в спектре гауссову и лоренцовскую составляющие однозначно полностью выделить не удается.

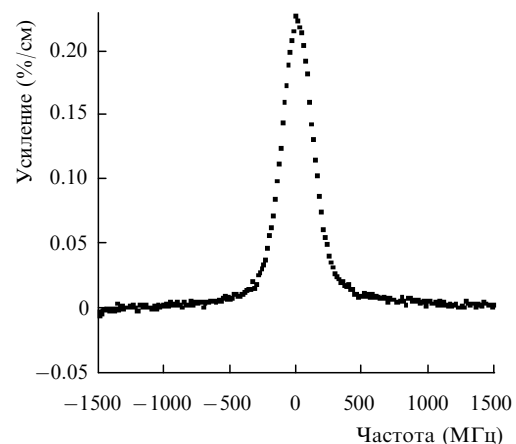


Рис.2. Спектр линии усиления на переходе $^2P_{1/2}(F=3) \rightarrow ^2P_{3/2}(F=4)$ атома иода.

Табл.1. Газодинамические условия эксперимента и результаты обработки спектра усиления.

M_{Cl_2} (ммоль/с)	M_{NP} (ммоль/с)	M_{NS} (ммоль/с)	p_1 (мм рт. ст.)	p_2 (мм рт. ст.)	p_{N_2} (мм рт. ст.)	p_{O_2} (мм рт. ст.)	p_{Cl_2} (мм рт. ст.)	p_{H_2O} (мм рт. ст.)	W_D	W_{L1}	T (К)
10	60.6	10	17.7	14.2	12.4	1.59	0.088	0.100	215	112	220
10	52.6	10	16.3	13.1	11.3	1.62	0.090	0.111	215	102	220
10	62.3	10	18.4	14.6	12.8	1.60	0.089	0.096	216	113	222
10	60.6	10	20.2	14	12.3	1.56	0.087	0.086	226	99	243
10	60.6	10	18.3	14	12.3	1.56	0.087	0.095	231	91	254
10	41.6	10	16.6	11.1	9.3	1.62	0.090	0.109	234	76	261
10	41.6	10	16.6	11	9.2	1.61	0.089	0.108	239	74	272
10	48	10	16.7	12	10.2	1.59	0.088	0.106	243	81	281
20	69.2	10	24.1	17	13.6	3.08	0.171	0.142	248	108	293
20	41.6	10	18.3	12.8	9.2	3.22	0.179	0.195	254	82	307
10	69.7	10	22.2	15.4	13.7	1.55	0.086	0.077	262	92	327
10	48	10	17.1	12	10.2	1.59	0.088	0.103	268	69	342
10	48	10	17.3	12	10.2	1.59	0.088	0.102	270	69	347

В табл.1 приведен также компонентный состав газового потока, рассчитанный следующим образом. Полный молярный расход газов M через проточную камеру в основном определяется расходом хлора M_{Cl_2} , первичного азота M_{NP} и вторичного азота M_{NS} : $M = M_{Cl_2} + M_{NP} + M_{NS}$. Кроме того, в газовом потоке присутствуют пары воды, поступающие с кислородом из ГСК, а также атомарный и молекулярный иод.

Степень утилизации хлора U в ГСК в условиях эксперимента составляла 95 %. Таким образом, парциальное давление кислорода в газовом потоке $p_{O_2} = p_2 M_{Cl_2} U / M$, а парциальное давление хлора $p_{Cl_2} = p_2 M_{Cl_2} (1 - U) / M$ (p_2 – давление в проточной камере). Давление паров воды в ГСК близко к давлению насыщенных паров $p_s = 1.5$ мм рт. ст над щелочным раствором перекиси водорода при температуре $-16^\circ C$. Отношение концентрации паров воды к концентрации активного газа (кислород + хлор) в ГСК и в проточной камере должно быть одинаковым, если отсутствует конденсация паров воды или выброс мелкодисперсного аэрозоля из ГСК. Это позволяет получить следующую оценку парциального давления паров воды в газовой смеси: $p_{H_2O} \approx (p_s / p_1) (M_{Cl_2} / M) p_2$ (p_1 – давление в ГСК. При смешении кислорода с предварительно охлажденным азотом реальное парциальное давление паров воды ниже из-за их частичной конденсации).

Наиболее сложно раздельно оценить парциальные давления атомарного и молекулярного иода, т. к. эффективность диссоциации неизвестна. Однако поскольку расход молекулярного иода не превышал 0.3 ммоль/с, то относительный вклад иодной составляющей в полную ударную ширину был не более 1 % и во внимание не принимался.

При анализе температурной зависимости ударного

уширения предполагалась идентичность функциональных зависимостей коэффициентов ударного уширения от температуры для всех компонентов активной газовой среды. В этом случае ударная ширина линии определяется формулой (2). В табл.2 приведены коэффициенты ударного уширения для указанных компонентов среды при температуре 300 К.

Таким образом, пренебрегая вкладом иодной компоненты в ударное уширение, ударную ширину, измеренную в мегагерцах, можно аппроксимировать зависимостью

$$W_L = (5p_{O_2} + 5.5p_{N_2} + 6.2p_{Cl_2} + 20.6p_{H_2O})f(300 K/T). \quad (3)$$

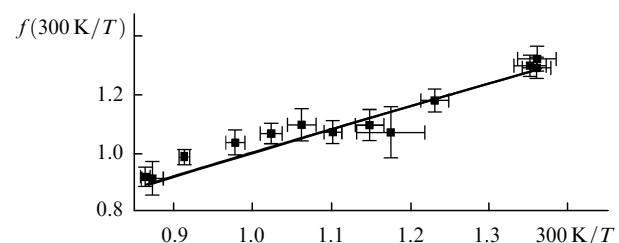
Полагая $f(300 K/T) = (300 K/T)^\gamma$ и учитывая, что $W_L = W_{L1} - 8$, уравнение (3) можно записать в виде

$$f\left(\frac{300 K}{T}\right) = \left(\frac{300 K}{T}\right)^\gamma = \frac{W_{L1} - 8}{5p_{O_2} + 5.5p_{N_2} + 6.2p_{Cl_2} + 20.6p_{H_2O}}. \quad (4)$$

На рис.3 представлена зависимость $f(300 K/T)$ для параметров, приведенных в табл.1. Показаны также погрешности определения $f(300 K/T)$ и T , которые вытекают из погрешностей измерений W_{L1} , W_D , p_2 . Наилучшее совпадение по методу наименьших квадратов средних экспериментальной функции и функции $(300 K/T)^\gamma$ достигается для $\gamma = 0.82$. Однако, как показывает анализ, функция $(300 K/T)^\gamma$ ($0.75 < \gamma < 1$) в интервале темпера-

Табл.2. Коэффициенты ударного уширения перехода ${}^2P_{1/2} \rightarrow {}^2P_{3/2}$ атомарного иода для указанных компонентов среды при $T = 300$ К.

Газ	α_i (МГц/мм рт. ст.)	Литература
O ₂	5	[7]
N ₂	5.5	[7]
Cl ₂	6.3	[11]
H ₂ O	20.6	[11]
I ₂	10.5	[4]
I	4.4	[4]

Рис.3. Экспериментальная функция $f(300 K/T)$ (точки) и функция $(300 K/T)^{0.82}$ (прямая).

тур 220–347 К находится в интервале погрешностей измерений, поэтому возможные $\gamma = 0.87 \pm 0.13$.

4. Заключение

По теории ударного уширения ударная ширина зависит от температуры по степенному закону $(300 \text{ K}/T)^\gamma$. Полученные экспериментальные данные удовлетворительно описываются зависимостью ударной ширины от температуры $W_L \sim (300 \text{ K}/T)^\gamma$, где $\gamma = 0.87 \pm 0.13$. Для уточнения γ необходимо измерять ударную ширину при температурах существенно ниже 200 К, т. к. при этом функция $(300 \text{ K}/T)^\gamma$ имеет более резкую зависимость от γ .

Полученные результаты могут оказаться весьма полезными для дистанционного бесконтактного способа определения статического давления в сверхзвуковых потоках активной среды кислородно-иодного лазера.

Авторы благодарят Научно-исследовательскую лабораторию ВВС США за предоставление диагностического комплекса (на основе диодной лазерной спектроскопии высокого разрешения) фирмы Physical Science Inc. (США), Б.Т.Андерсона (B.T.Anderson) и Р.Ф.Тейта (R.F. Tate) за помощь на начальном этапе работы с этим

комплексом, а также Г.Д.Хейгера (G.D.Hager) за обсуждение результатов работы.

Работа была выполнена при финансовой поддержке Европейского офиса аэрокосмических исследований и разработок и административной поддержке МНТЦ (контракт 1826 Р).

1. Зуев В.С., Катулин В.А., Носач В.Ю., Носач О.Ю. *ЖЭТФ*, **62**, 1673 (1972).
2. Patrick T.D., Palmer R.E. *J.Chem.Phys.*, **62**, 3350 (1975)
3. Neuman D.K., Clark R.K., Shea R.F., Davis S.J. *J.Chem.Phys.*, **79**, 4680 (1983).
4. Engelman R., Palmer B., Davis S.J. *J.Opt.Soc.Amer.*, **73**, 1585 (1983).
5. Cerny D., Aubert-Frecon M., Basic R., Bussery B., Nota M., Verges J. *Proc.SPIE*, **1031**, 312 (1988).
6. Tate R.F., Hunt B.S., Helms C.A., Truesdell K.A., Hager G.D. *IEEE J.Quantum Electron.*, **31**, 1632 (1995).
7. Davis S.J., Kessler W.J., Bachmann M. *Proc.SPIE*, **3612**, 157 (1999).
8. Вайнштейн Л.А., Собельман И.И., Юков Е.А. *Возбуждение атомов и уширение спектральных линий* (М., Наука, 1979, с.253).
9. Загидуллин М.В., В.Д.Николаев, М.И.Свистун, Хватов Н.А. *Квантовая электроника*, **25**, 413 (1998).
10. Загидуллин М.В., В.Д.Николаев, М.И.Свистун, Хватов Н.А. *Квантовая электроника*, **30**, 161 (2000).
11. Carroll D.L. *AIAA J.*, **33**, 1454 (1995).

ПОПРАВКА

Задерновский А.А. Стимулированное γ -излучение свободных изомерных ядер при антистоксовых переходах («Квантовая электроника», 2001, т.31, № 1, с.90–94).

В статье допущена опечатка: на стр.93 в формуле (11) вместо сомножителя $\left(\frac{\omega_1 + \omega_{if}}{\omega_{si}}\right)^{2K+1}$ должен стоять сомножитель $\left(\frac{\omega_1 + \omega_{if}}{\omega_{sf}}\right)^{2K+1}$.