

2

**И Н С Т И Т У Т
ЯДЕРНОЙ ФИЗИКИ СОАН С С С Р**

И Я Ф 35 - 71

Г.Г.Долгов-Савельев, А.А.Подминогин

ИМПУЛЬСНЫЙ ЛАЗЕР НА СМЕСИ $F_2 + H_2$

Новосибирск

1971

ИМПУЛЬСНЫЙ ЛАЗЕР НА СМЕСИ $F_2 + H_2$

Г.Г.Долгов-Савельев, А.А.Подминогин

А Н Н О Т А Ц И Я

В работе проведено исследование быстрого инициирования реакции $F + H_2 = HF^* + H$ в коротком мощном электрическом разряде.

Исследован спектральный состав вынужденного излучения и распределение его во времени относительно тока разряда.

Показано, что для эффективного инициирования реакции необходимо иметь среднюю энергию электронов в разряде $\sim 1,5$ эв. В оптимальных условиях получены: мощность генерации ~ 300 квт, энергия $\sim 5 \cdot 10^{-2}$ дж с электрическим к.п.д. $\sim 8\%$.

1. Введение

В последнее время широко ведутся исследования по использованию энергии, запасенной в колебательных степенях свободы молекул, образующихся в быстрых химических реакциях, для получения вынужденного излучения с высоким химическим к.п.д. Наиболее перспективной является, по-видимому, реакция

$F_2 + H_2 = 2HF$, в результате которой образуется возбужденная молекула HF^* /1, 2, 3/.

При анализе результатов проделанных работ в этом направлении выявлено влияние на характеристики вынужденного излучения роста температуры рабочей смеси в процессе реакции /4/, чистоты системы /4/, определены скорости колебательной релаксации HF /5/.

Процесс заселения колебательно-вращательных уровней в элементарном акте реакции $F + H_2$ исследован в работе /6/. В этой работе показано, что большая мощность вынужденного излучения может быть получена в условиях быстрого инициирования значительного количества начальных активных центров реакции $F + H_2$.

Быстрое инициирование реакции, на наш взгляд, представляет определенный интерес в изучении процесса заселения колебательно-вращательных уровней молекулы HF , образующейся в результате реакции, и изучения временных характеристик генерации в самоподдерживающейся цепной реакции.

Целью данной работы явилось выяснение влияния скорости инициирования реакции на характеристики вынужденного излучения и попытка оптимизации режима работы лазера на разных давлениях рабочей смеси.

2. Экспериментальная установка

Установка (рис.1) включает в себя следующие элементы:

1) кварцевая разрядная трубка с окнами из LiF , установленными под углом Брюстера, и металлическим экраном;

2) зеркало с $R = 5\text{м}$ из стекла с алюминиевым покрытием;

3) плоская полированная пластина из LiF (второе 10% зеркало резонатора), либо входное сапфировое окно калориметра ИЭК-1;

4) кабельный генератор коротких высоковольтных (в/в) импульсов;

5) импульсный трансформатор - ИТ;

6) в/в выпрямитель на 25 кв;

7) газовая система с двумя баллонами для F_2 и H_2 ;

8) форвакуумный насос;

9) измеритель инфракрасного излучения.

Разрядная кварцевая трубка длиной $l = 50$ см с $d_{вн} = 12$ мм оканчивается металлическими держателями, окон, которые служат электродами разряда. Для уменьшения индуктивности разрядной цепи, кварцевая трубка помещена в металлический экран.

Генератор коротких в/в импульсов собран по схеме, приведенной в /7/. Генератор при напряжении на кабельных линиях 25 кв, выдаёт на вторичной обмотке кабельного импульсного трансформатора, при работе на 75 омную нагрузку, колоколообразный импульс напряжением 60 кв с длительностью фронтов

$\tau_{ф} \approx 3 \cdot 10^{-8}$ сек. В эксперименте использовались кабельные линии двух длин 8 и 16 м, для получения длительностей импульса напряжения, соответственно:

$$\tau_{и} \approx 10^{-7} \text{ сек и } \tau_{и} \approx 2 \cdot 10^{-7} \text{ сек.}$$

Импульсный повышающий трансформатор с $n \approx 2,3$ выполнен на 12 ферритовых кольцах с $d_{вн} = 80$ мм кабелем с $Z = 50$ ом. Изоляция жилы кабеля при намотке не нарушалась, а оплётка разрезана и скоммутирована в две параллельные секции по 3,5 витка при полном количестве витков, равном 8.

Газовая система выполнена из медных трубок с $d_{вн} = 2$ мм. Давление измерялось U -образным манометром, заполненным фторированным маслом.

Энергия вынужденного инфракрасного излучения измерялась калориметром типа ИЭК-1, а форма и длительность сигнала генерации фиксировалась детектором $GeAu$ с разрешающим вре-

менем $\sim 3 \cdot 10^{-8}$ сек. В качестве ослабителя сигнала применялся фторопласт -4.

3. Результаты эксперимента

Эксперимент проводился на смеси $F_2 + H_2$ при давлениях:

$$F_2 - 2 \div 20 \text{ мм рт.ст.}$$

$$H_2 - 2 \div 15 \text{ мм рт.ст.}$$

В процессе проведения экспериментов получена зависимость выходной энергии вынужденного излучения от напряжения на питающих разряд кабельных линиях, при различных давлениях F_2 и H_2 в смеси. По данным калориметрических измерений построены графики зависимости энергии излучения от параметров разряда (рис.2). Из графиков видно, что оптимум выходной энергии, при различных давлениях соответствует различным питающим напряжениям. Одновременно проводились измерения тока в разряде и напряжения на нём. Это позволило оценить вклад энергии в объём от разряда и определить в каждом отдельном случае электрический к.п.д. - η (η - отношение энергии вынужденного излучения к энергии вложенной в объём от разряда). Зависимость вклада энергии в объём от разряда и электрического к.п.д. от напряжения на питающих линиях генератора изображены на рис.3 (цифры около кривых на всех приведенных графиках указывают, соответственно, давление в мм рт.ст. F_2 и H_2).

Из сопоставления графиков рис.2 и 3 видно, что вклад энергии в объём от разряда не однозначно связан с выходной энергией излучения. На меньших давлениях рабочей смеси вклад энергии от разряда больше, но энергия излучения (оптимальное значение) значительно меньше, чем на больших давлениях смеси. Наглядно также прослеживается не пропорциональная зависимость энергии вынужденного излучения от вложенной энергии, для постоянного давления смеси, при изменении напряжения на генераторе. На давлении смеси $F_2 + H_2$ меньших $10 + 10$ мм рт.ст., при увеличении питающего напряжения (увеличивается и энергия в разряде), энергия излучения даже уменьшается.

Необходимо отметить то обстоятельство, что на энергетический выход излучения естественно сильно влияет величина коэффи-

коэффициента отражения выходного зеркала резонатора. На приведенных графиках, зависимости изображенные сплошными линиями, получены с германиевой пластинкой (отражение 30%) в качестве выходного зеркала. Пунктирной линией на рис.2 изображена зависимость энергии излучения при $P(F_2+H_2) = 20 + 10$ мм рт.ст.

от напряжения на питающих линиях генератора при использовании входного окна (сапфир) калориметра ИЭК-1 в качестве выходного зеркала резонатора (такой же результат получается и при измерении детектором $GeAu$ с плоской пластиной LiF в качестве второго зеркала). На меньших напряжениях в этом случае энергия излучения меньше, а на больших напряжениях — больше, чем в случае 30% зеркала.

На графике рис.3 пунктирной линией изображена зависимость η для данного случая.

При рассмотрении временных осциллограмм напряжения на разряде и тока разряда, выявляется особенность резкого уменьшения величины тока при достижении напряжения на разряде определенной величины. Ток резко уменьшается, а напряжение еще некоторое время остается без заметных изменений или немного растёт до конца импульса генератора. Эта особенность сильнее проявляется на больших давлениях фтора в смеси. Типичные осциллограммы тока в разряде — I_p и напряжения на нём — U_p приведены на рис.4 а,б,в,г. (рабочая смесь $P(F_2+H_2) = 20 + 10$ и $P(F_2+H_2) = 10 + 20$ мм рт.ст., соответственно).

В чистом фторе ток разряда либо вовсе обрывается, либо имеет глубокий провал и далее снова нарастает (осциллограммы (д) и (ж) рис.4 при $P_{F_2} = 20$ мм рт.ст.). Оценки энергии электронов по напряженности поля и длине свободного пробега в момент резкого уменьшения тока имеет величину 1-2 эв.

В работе /8/ было показано, что процесс диссоциативного захвата электронов фтором ($F_2 + e = F + F^-$) имеет резонансный характер с максимумом при энергии электронов $\sim 1,5$ эв.

Данное обстоятельство позволяет объяснить не только резкие изменения в токе разряда, но и ход кривых зависимости выходной энергии излучения на разных давлениях смеси от напряжения. В рассматриваемом случае полезный вклад дают те электроны, которые диссоциируют F_2 и дают в зависимости от их ко-

личества больше или меньше начальных активных центров реакции, а не полный ток в разряде рабочей смеси. Последний осуществляется, по нашему мнению, нежелательный нагрев смеси, за что говорят последующие эксперименты.

Если укоротить импульс напряжения на генераторе до $10 \cdot 10^{-7}$ сек, то энергетический выход излучения заметно не меняется и равен $4,5 \div 5 \cdot 10^{-2}$ дж, при этом увеличивается длительность генерации с $1,5 \div 2$ до $2,5 \div 3 \cdot 10^{-7}$ сек, а мощность излучения уменьшается с 300 квт до 200 квт. Электрический к.п.д. (η) увеличивается с $4 \div 5\%$ до $7 \div 8\%$.

Увеличение длительности переднего фронта импульса напряжения на генераторе до $1,5 \div 2 \cdot 10^{-7}$ сек, при одновременном увеличении длительности самого импульса до $5 \div 7 \cdot 10^{-7}$ сек, при прочих равных условиях, приводит к уменьшению энергии излучения до 10^{-3} дж, резкому уменьшению мощности и η , а длительность импульса излучения несколько увеличивается. Попытка оптимизации коэффициента отражения выходного зеркала не привела к сколь-нибудь значительному увеличению выходной энергии.

Однако энергия, вложенная в объём от разряда в этом случае больше, чем при коротком импульсе. Уменьшение энергии когерентного излучения можно объяснить тем, что разряд в трубке развивается на фронте импульса при меньшем напряжении и с меньшим начальным током (рис.4, 3). Средняя энергия электронов в этот момент $< 1,5$ эв, и меньшая их начальная концентрация приводит к уменьшению скорости процесса $F_2 + e = F + F^-$, следовательно, и к уменьшению начальной скорости реакции

$F + H_2 = HF^* + H$. Так как мощность вынужденного излучения $\sim \frac{dHF}{dt} \cdot h\nu$, то уменьшение скорости образования

HF^* приводит к уменьшению мощности излучения. Последующее нарастание тока в разряде не даёт вклада в энергию вынужденного излучения потому, что генерация к этому моменту времени прекращается. Это видно из сопоставления осциллограмм (з) и (и) рис.4. Проведенные эксперименты дают основание утверждать о том, что, для получения большой мощности излучения при большом η , необходимо быстро инициировать значительное количество атомарного фтора, чтобы иметь большую начальную скорость реакции $F + H_2 = HF^* + H$, в результате которой образуются молекулы HF в возбужденном состоянии и создают-

ся условия инверсной населенности колебательно-вращательных уровней.

В работе /6/ был исследован спектральный состав вынужденного излучения во времени. На рис.5 приведены типичные осциллограммы спектрального состава, интегрального сигнала генерации и тока в разряде. Как видно из этого рисунка, колебательно-вращательные переходы $\nu(2-1) - P_4 \div P_{10}$ появляются одновременно, причём одновременность их появления фиксировалась с точностью не хуже, чем 10^{-8} сек. Крутизна нарастания фронта сигнала излучения определяется разрешающим временем детектора.

Время вращательной релаксации, вычисленное на основании газокинетических сечений, оказывается больше 10^{-8} сек и равно $\sim 3 \cdot 10^{-7}$ сек. На основании полученных результатов можно утверждать, что при элементарном акте реакции $F + H_2$ одновременно заселяются колебательно-вращательные уровни вплоть до $P(\nu = 2)_{10}$. Вынужденное излучение на переходах $\nu(2-1)$ начинается с задержкой порядка 10^{-7} сек от момента начала тока разряда; а через $7 \div 8 \cdot 10^{-8}$ сек после начала генерации на переходах $\nu(2-1)$, идет генерация на переходах $\nu(1-0)$. При этом $\nu(1-0) P_8$ наблюдается нерегулярно и только при хорошей от-
качке системы.

Возможность наблюдения переходов $\nu(1-0)$ в этом случае обязана, по-видимому, тому, что за времена меньше $2 \cdot 10^{-7}$ сек в результате реакции не успевает наработаться значительного количества HF и не происходит заметного нагрева примесного HF , который бы мог интенсивно поглощать излучение на переходах $\nu(1-0)$.

Более позднее время начала генерации на переходах $\nu(1-0)$ связано, по нашему мнению, с каскадными переходами с уровня ν_2 на ν_1 . В процессе дальнейшего протекания реакции идет накопление HF и растёт температура в объёме, что в свою очередь увеличивает скорость релаксации и ведёт к срыву генерации значительно раньше времени окончания реакции $F + H_2 = HF^* + H$. Развитие цепи $H + F_2 = HF^* + F$ за времена генерации заметного вклада в излучение, по нашему мнению, не даёт, так как константа скорости этой реакции меньше константы скорости реакции $F + H_2$ примерно на порядок /4/.

В работе /9/ инициирование реакции также осуществлялось электрическим разрядом, однако нужно отметить, что наши результаты несколько отличны от результатов работы /9/. Отличие результатов состоит в том, что при сравнимых энергетических вкладах в разряд и длительностях разрядного тока (в нашем случае рис.4 з,и) генерация начинается с различными задержками относительно начала импульса тока и различны длительности сигналов генерации.

Заключение

На основании проведенных экспериментов, мы можем утверждать, что для получения высокого химического и энергетического коэффициентов полезного действия необходимо быстрое, мощное инициирование реакции в смеси $F_2 + H_2$ (это подтверждается также работами по световой накачке /4/).

Однако применение разрядной техники или световое инициирование при больших объемах и давлениях активного вещества встречает большие технические трудности.

Эти трудности могут быть преодолены, если для возбуждения смеси $F_2 + H_2$ использовать мощный электронный пучок. В этом случае, практически не зависимо от объема, могут быть обеспечены времена инициирования порядка нескольких десятков наносекунд, и таким образом получен большой энергетический коэффициент полезного действия.

Авторы выражают глубокую благодарность Г.М.Чумак за ценные советы при обсуждении результатов и В.Н.Бородкину за помощь при проведении эксперимента.

Л и т е р а т у р а

1. Н.Г.Басов, Л.В.Кулаков, Е.П.Маркин, А.И.Никитин, А.Н.Ораевский, ЖЭТФ, Письма 9, 613, 1969.
2. О.М.Батовский, Г.К.Васильев, Е.Ф.Макаров, В.Л.Тальрозе, ЖЭТФ, Письма 9, 341, 1969.
3. М.С.Джиджоев, В.Т.Платоненко, Р.В.Хохлов, УФН, 100, 341, 1970.
4. Г.Г.Долгов-Савельев, В.Ф.Жаров, Ю.С.Неганов, Г.М.Чумак, ЖЭТФ, № 7, 1971 (в печати).
5. *J.R. Aizy, S.F. Fried, Chemical Physics Letters, Vol. 8, 23, 1971*
6. Г.Г.Долгов-Савельев, А.А.Подминогин, Оптика и Спектроскопия, 1971 (в печати).
7. А.А.Подминогин, Труды конференции по электронной технике, № 2(18), 42, 1970.
8. *J.J. De Corpo, Ronald P. Stelger, J.L. Franklin, and J.L. Margrave, Chemical Physics, Vol. 53, 936, 1970*
9. В.Л.Тальрозе, Г.К.Васильев, О.С.Батовский, Кинетика и Катализ, X1, 277, 1970.

Подписи к рисункам

Рис.1. Схема установки.

Рис.2. Зависимость энергии вынужденного излучения на разных давлениях смеси $F_2 + H_2$ от величины напряжения генератора.

Рис.3. Зависимость вкладываемой энергии в объём от разряда и электрического к.п.д. на разных давлениях смеси $F_2 + H_2$ от величины напряжения генератора.

Рис.4. Осциллограммы сигналов:

а, б - ток разряда и напряжение на разряде соответственно при $P(F_2 + H_2) = 20 + 10$ мм рт.ст., калибровка 100 мГц;

в, г - ток разряда и напряжение на разряде соответственно при $P(F_2 + H_2) = 10 + 20$ мм рт.ст., калибровка 100 мГц;

д, е - ток разряда и напряжение на разряде соответственно при $P_{F_2} = 20$ мм рт.ст., калибровка 100 мГц;

ж - ток разряда при $P_{F_2} = 20$ мм рт.ст.;

з - ток разряда при медленном нарастании напряжения генератора, $P(F_2 + H_2) = 18 + 10$ мм рт.ст., калибровка 10 мГц;

и - сигнал вынужденного излучения для случая (з), развертка - 10^{-7} сек/дел.

Рис.5. Осциллограммы сигналов тока в разряде, спектрального состава и интегрального сигнала вынужденного излучения.

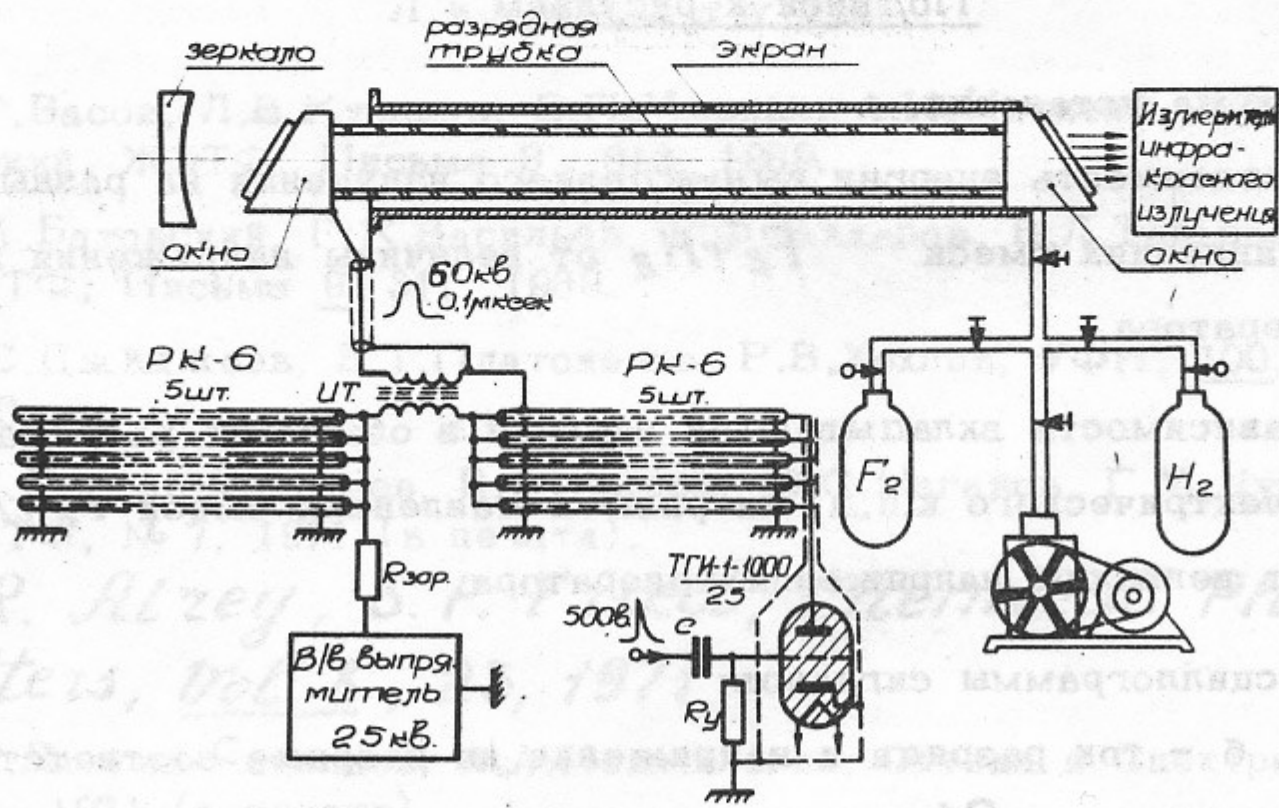


Рис. 1

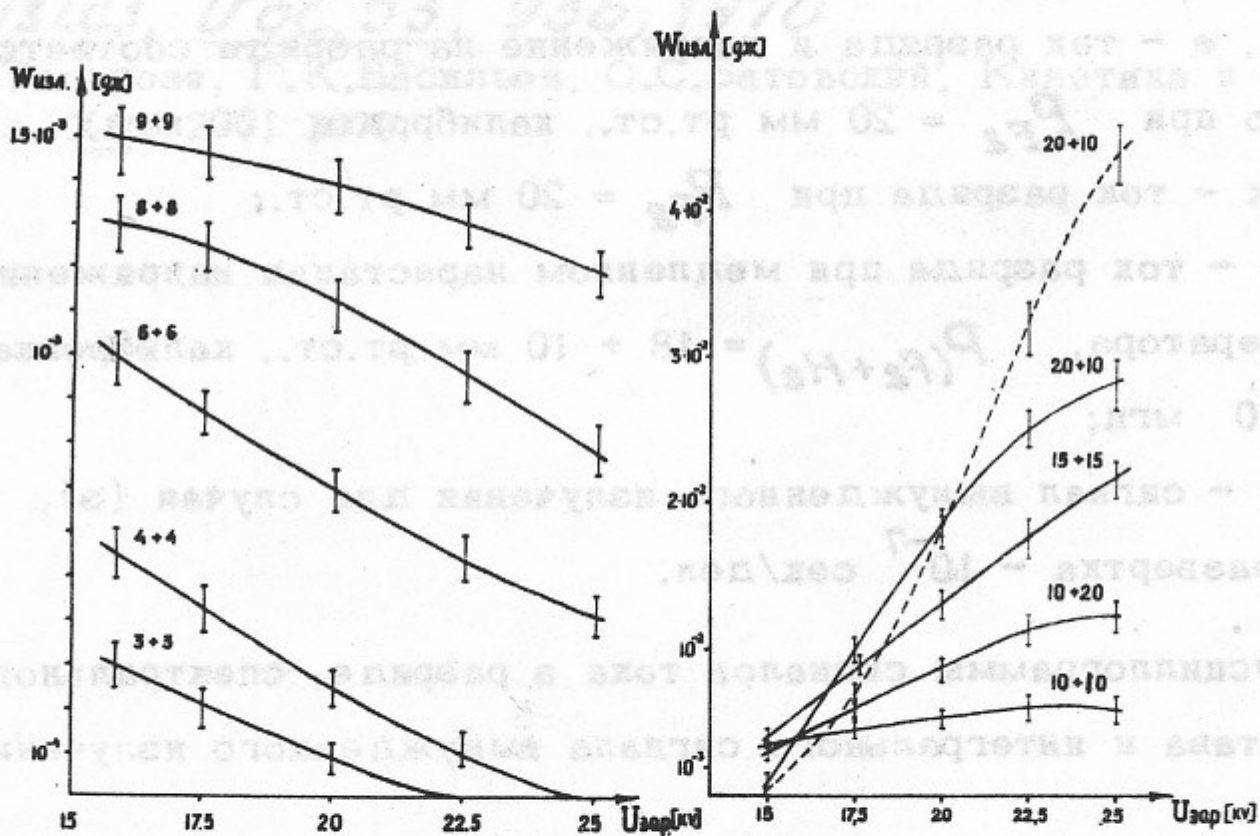


Рис. 2

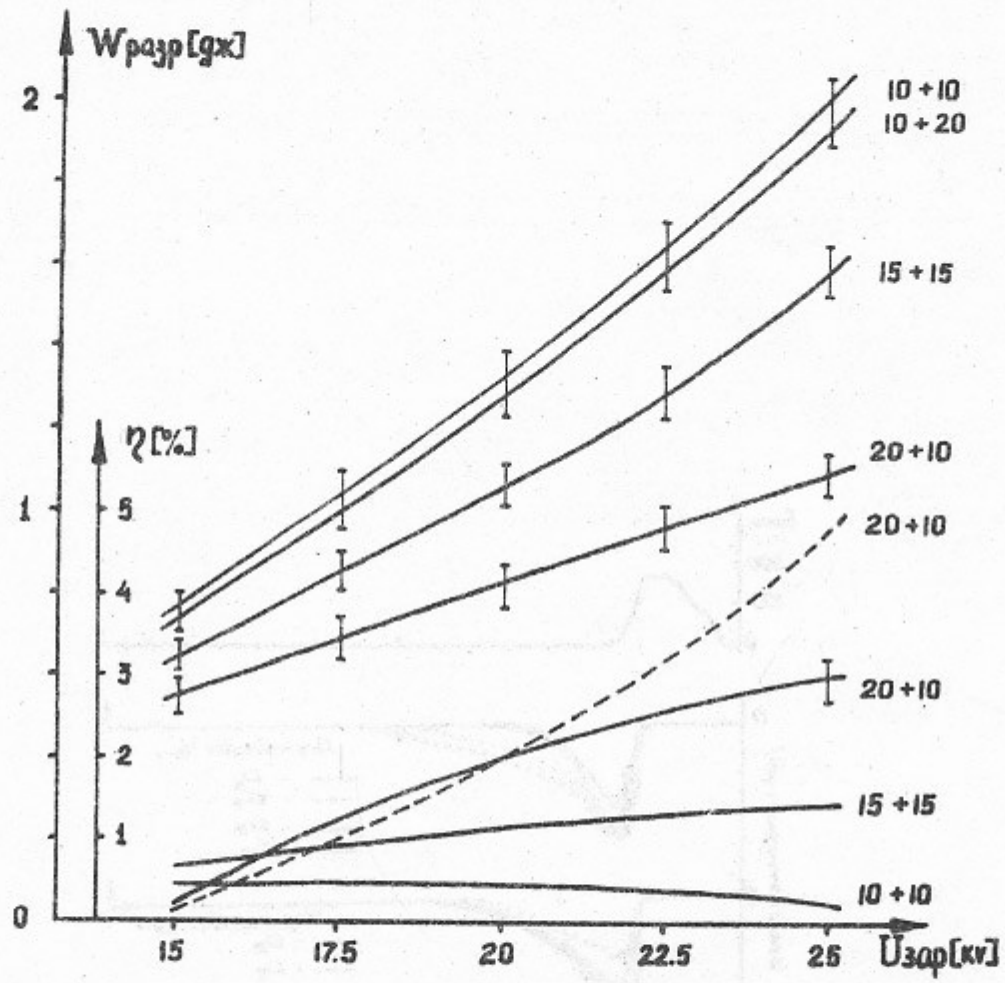


Рис. 3

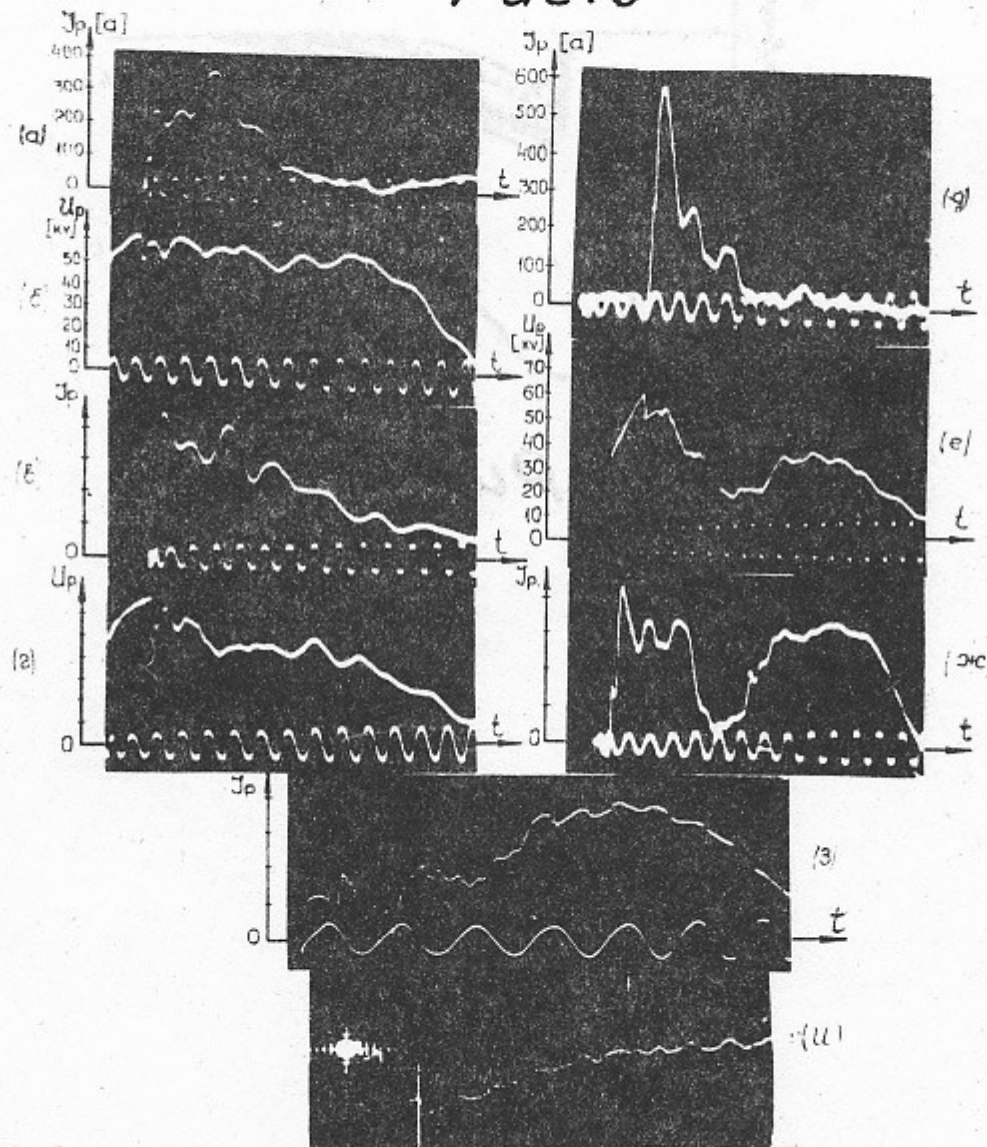


Рис. 4

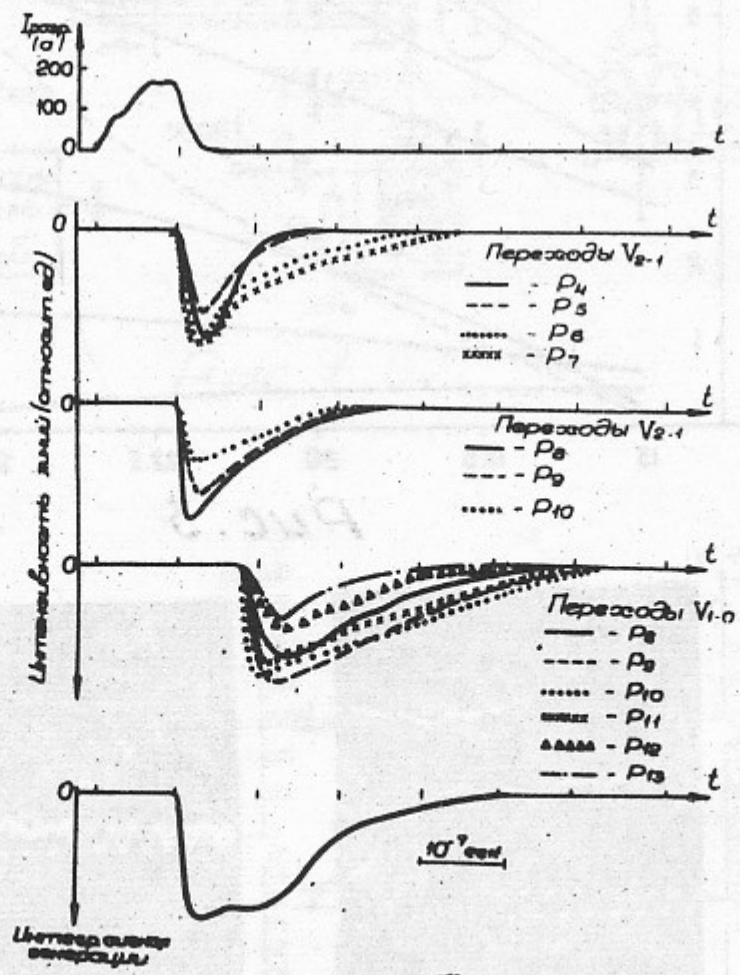


Рис. 5

Ответственный за выпуск А.А.Подминогин
Подписано к печати 1.6.71 МН02673
Усл. 0,6 печ.л., тираж 150 экз. Бесплатно
Заказ № 35 . ПРЕПРИНТ

Отпечатано на ротапринтере в ИЯФ СО АН СССР, нв.