

ИССЛЕДОВАНИЕ УСИЛЕНИЯ ИЗЛУЧЕНИЯ  $\text{CO}_2$ -ЛАЗЕРА  
В ПРОДУКТАХ РЕАКЦИИ ОКИСИ УГЛЕРОДА  
С ЗАКИСЬЮ АЗОТА

*Н. Н. Кудрявцев, С. С. Новиков, И. Б. Светличный*

(Москва)

Для создания лазерно-активных газовых сред и исследования их характеристик удобно использовать расширяющиеся газодинамические потоки [1-4] и быстрые химические реакции [5,6]. Представляет интерес идея химико-газодинамического лазера [7,8], основанного на сочетании химического и газодинамического способов создания инверсии населенности.

В данной работе исследованы условия возникновения инверсии населенности колебательных уровней молекулы  $\text{CO}_2$  в расширяющихся потоках различных газовых смесей, содержащих  $\text{CO}_2$ , в том числе в продуктах реакции закиси азота с окисью углерода с добавкой небольшого количества водорода и при разбавлении исходной смеси азотом или аргоном. Изучено влияние состава исходной смеси и температуры перед соплом на коэффициент усиления когерентного излучения с длиной волны  $\lambda = 10.6$  мкм в рабочем сечении потока.

Для создания колебательно-неравновесного потока исследуемой смеси использована установка, работающая по схеме импульсного газодинамического лазера на ударной трубе с соплом [9-11]. Измерение коэффициента усиления производилось прямым методом [12, 13] путем просвечивания рабочего сечения потока лучом зондирующего электроразрядного  $\text{CO}_2$ -лазера.

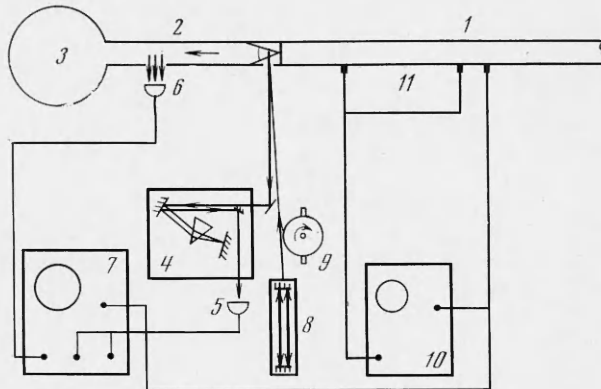
Схема экспериментальной установки показана на фиг. 1. Ударная труба 1 внутренним диаметром 80 мм соединялась с расширительной секцией 2, в которой помещалось плоское клиновидное сопло. Секция расширения соединялась с ресивером 3. Общая длина ударной трубы 4.2 м; длина секции высокого давления 0.9 м. В качестве толкающего газа использовалась смесь водорода и азота. Начальное давление исследуемой смеси во всех опытах более 50 мм рт. ст. Перед наполнением исследуемой смесью секция низкого давления откачивалась до давления 0.1 мм рт. ст. Натекание воздуха в ударную трубу не превышало 0.1 мм рт. ст. за 10 мин. Исходные смеси приготавливались в системе смесителей, предусматривающей тщательное осушение компонент.

Давление  $p_0$  и температура  $T_0$  в отраженной ударной волне перед соплом рассчитывались, исходя из экспериментально измеренной скорости ударной волны. Измерение скорости ударной волны производилось по сигналам двух пьезоэлектрических датчиков давления 11 на базе 0.5 м. Сигнал третьего датчика, расположенного на расстоянии 0.2 м выше по потоку, использовался для запуска и синхронизации всей регистрирующей аппаратуры.

В данной работе давление  $p_0$  сохранялось постоянным от опыта к опыту, предварительный расчет режима работы ударной трубы проводился исходя из этого условия. По заданным значениям  $p_0$  и  $T_0$  определялось необходимое начальное давление исследуемой смеси  $p_1$ , давление  $p_4$  толкающей смеси газов и соотношение водорода и азота в толкающей смеси. Окончательный расчет по измеренному числу Маха  $M$  ударной волны давал значения  $p_0$ , не сильно отличавшиеся от заданных.

Для создания необходимых начальных условий истечения между торцом ударной трубы и соплом устанавливалась диафрагма из отожженной меди толщиной 50 мм. Секция расширения и ресивер перед опытом откачивались до давления менее 1 мм рт. ст.

Плоское клиновидное сопло имело полуугол раскрытия  $15^\circ$  и регулируемое критическое сечение, высота которого могла меняться от 0 до 3 мм. Диффузор сопла переходил в прямоугольный канал сечением  $60 \times 80 \text{ мм}^2$ . Для вывода излучения в расширительной секции имелись две



Фиг. 1

пары окон из сульфида цинка, пропускающие инфракрасное излучение в диапазоне  $\lambda = 0.5-12.0 \text{ мкм}$ .

В качестве источника зондирующего когерентного излучения с  $\lambda = 10.6 \text{ мкм}$  использовался электроразрядный  $\text{CO}_2$ -лазер ЛГ-23 мощностью 1 Вт 8, работавший в одномодовом режиме. Схема питания лазера обеспечивала постоянство мощности излучения во время опыта.

Для измерения коэффициента усиления зондирующий луч дважды пересекал активный участок расширяющегося газового потока и затем подавался на входную щель монохроматора ИКМ-1 4 и регистрировался фотосопротивлением 5 на основе германия, легированного золотом. Для получения нулевой линии луч зондирующего лазера перекрывался obtюратором 9 на 0.5 мсек с периодом 10 мсек.

Регистрировалось также собственное инфракрасное излучение исследуемых газов. Для этого использовалось второе окно из сульфида цинка, расположенное ниже по потоку, и фотосопротивление 6. Сигналы фотоприемников 5, 6 регистрировались на экране 5-лучевого осциллографа СГ-33 7. Временное разрешение системы регистрации ИК-излучения составляло 0.05 мсек.

Перед каждым опытом оптическая система измерения коэффициента усиления юстировалась таким образом, чтобы центр пучка зондирующего лазера после прохождения активного участка и монохроматора совпадал с чувствительным элементом фотоприемника. Для устранения влияния вибраций все элементы оптической системы были акустически изолированы от ударной трубы. Серия контрольных опытов с инертной смесью, не содержащей  $\text{CO}_2$ , показала достаточную эффективность принятых мер, а также незначительное влияние ширен-эффекта на результаты измерений. Флуктуации сигнала фотоприемника, обусловленные вибрациями и оптической неоднородностью потока, составляли менее 10% обычно наблюдаемого полезного сигнала усиления. Контрольными опытами пока-

зано пренебрежимо малое влияние спонтанного инфракрасного излучения исследуемых смесей на результаты измерений коэффициента усиления на длине волны 10.6 мкм.

Типичная осциллограмма записи усиленного излучения зондирующего лазера (лучи 1 и 2) собственного ИК-излучения (луч 3) показана на фиг. 2. Измерялось отношение  $\Delta I / I_0$ , где  $\Delta I = I_1 - I_0$ ;  $I_0$  — интенсивность излучения зондирующего лазера,  $I_1$  — интенсивность луча, прошедшего активный участок потока. Для увеличения точности отсчета величины  $\Delta I$  на экране осциллографа регистрация дублировалась на втором канале осциллографа С1-33 с большей скоростью развертки и большей чувствительностью. Коэффициент усиления лазерного излучения определяется по формуле

$$(1) \quad G = \frac{1}{L} \ln \left( 1 + \frac{\Delta I}{I_0} \right) \approx \frac{1}{L} \frac{\Delta I}{I_0} \quad \left( \frac{\Delta I}{I_0} \ll 1 \right)$$

Здесь  $L$  — длина пути лазерного луча в активной среде, которая в опытах составляла 16 см. Из осциллограммы, приведенной на фиг. 2, видно, что интенсивность собственного инфракрасного излучения (луч 3) через промежуток времени  $\tau \approx 2$  мсек после начала истечения резко возрастает. Это, по-видимому, связано с возрастанием плотности газа в расширительной части установки.

По измеренной величине  $G$  рассчитывались относительная населенность лазерных уровней молекулы  $\text{CO}_2$  и колебательная температура  $\text{CO}_2$  в исследуемом потоке газа.

Расчет давления  $p_6$  и температуры  $T_6$  в рабочем сечении расширяющегося потока для типичных условий данных опытов дает  $p_6 = 10-25$  мм рт. ст.  $T_6 = 150-350^\circ \text{K}$ . Сравнительная оценка доплеровского и столкновительного уширения линии излучения  $\text{CO}_2$  с  $\lambda = 10.6$  мкм для указанных значений  $p_6$  и  $T_6$  показывает, что можно считать линию лазерного излучения  $\text{CO}_2$  уширенной в основном за счет столкновений.

Используя выводы и предположения работы [14], имеем для коэффициента усиления в центре линии лазерного излучения  $\text{CO}_2$ , уширенной за счет столкновений

$$(2) \quad G = \frac{\lambda_{12} A_{12}}{8\pi Z_c} (N_{00^1} - N_{10^0}) \frac{45.6}{T_6} \exp\left(-\frac{239}{T_6}\right)$$

Здесь  $\lambda_{12}$  — длина волны излучения, соответствующего лазерному переходу ( $00^1-10^0$ ) молекулы  $\text{CO}_2$ ;  $A_{12}$  — вероятность спонтанного перехода между уровнями ( $00^1$ ) и ( $10^0$ );  $N_{00^1}$  и  $N_{10^0}$  — населенности верхнего и нижнего лазерных уровней  $\text{CO}_2$  соответственно;  $Z_c$  — число столкновений молекулы  $\text{CO}_2$  в исследуемой смеси [15]. Предполагается, что переходы происходят с вращательного уровня  $J = 20$  колебательного состояния  $00^1$  [16, 17].

Формула (2) использовалась для вычисления инверсии населенностей лазерных уровней  $\text{CO}_2$  по измеренной величине  $G$ . Колебательная температура верхнего лазерного уровня  $\text{CO}_2$  оценивалась по формуле

$$(3) \quad T_{v_2} = -\theta_2 \left\{ \ln \left[ \frac{N_{v_2^1} - N_{v_2^0}}{N_{\text{CO}_2}} + \exp\left(-\frac{\theta_1}{T_6}\right) \right] \right\}^{-1}$$



Фиг. 2

в предположении малой заселенности нижних уровней и приближенного равенства колебательной температуры нижнего лазерного уровня с поступательной температурой  $T_6$  [18]. Здесь  $\theta_2$  и  $\theta_1$  — характеристические температуры верхнего и нижнего лазерных уровней;  $N_{\text{CO}_2}$  — число молекул  $\text{CO}_2$  в единице объема рабочего сечения.

Для обработки методики была проведена серия опытов по измерению коэффициента усиления лазерного излучения с  $\lambda = 10.6$  мкм в расширяющейся смеси  $m\text{CO}_2 + n\text{N}_2 + k\text{He}$ , вытекающей из сопла ударной трубы. Температура и давление смеси перед соплом соответствовали условиям за отраженной ударной волной. Исследована зависимость коэффициента усиления  $G$  от соотношения компонент смеси, высоты критического сечения сопла  $h^*$  и температуры торможения  $T_0$  при постоянном давлении  $p_0 \approx 6$  атм. Полученные значения величины  $G$ , относительной населенности уровней  $\text{CO}_2$   $\delta n_{21} = (N_{00^0_1} - N_{10^0_0}) / N_{\text{CO}_2}$  в % и колебательной температуры верхнего лазерного уровня  $T_{v_2}$ , в °K, представленные в таблице, хорошо согласуются с результатами работ [3, 16-18]. Во всех опытах  $h^* = 0.9$  мм, степень расширения потока в рабочем сечении сопла  $A/A^* = 24$ . Номером 1 обозначена смесь  $0.05 \text{CO}_2 + 0.45 \text{N}_2 + 0.5 \text{He}$ , номером 2 — смесь  $0.1 \text{CO}_2 + 0.4 \text{N}_2 + 0.5 \text{He}$ , номером 3 — смесь  $0.2 \text{CO}_2 + 0.3 \text{N}_2 + 0.5 \text{He}$ .

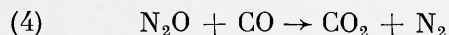
Номер смеси	$T_0$ , °K	$G$ , м <sup>-1</sup>	$\delta n_{21}$	$T_{v_2}$	Номер смеси	$T_0$ , °K	$G$ , м <sup>-1</sup>	$\delta n_{21}$	$T_{v_2}$
1	1100	0.5	1.9	850	2	1590	0.74	1.6	800
	1240	0.73	2.9	940		1720	0.57	1.1	760
	1300	0.74	2.85	940		1780	0.45	0.9	730
	1480	0.62	2.5	920		1820	0.81	1.8	830
		0.37	1.4	800		1980	0.78	1.7	830
	1740	0.24	1.0	740		2140	0.46	1.1	760
		0.5	2.1	860		2420	0.39	0.9	750
		0.32	1.4	800		740	0.5	0.45	610
	1960	0.23	1.4	770		1110	0.6	0.6	680
		0.37	1.6	830	1200	0.74	0.7	690	
		0.5	2.3	910	3	1400	0.39	0.45	640
	2000	0.27	1.25	790		1530	0.28	0.3	620
	980	0.44	0.82	700		1600	0.35	0.45	650
	1230	0.41	0.78	690		1740	0.64	0.8	740
	1300	0.53	1.0	740		1970	0.35	0.5	770
		0.75	1.4	790		2320	0.27	0.36	760
	1400	0.62	1.2	760					
		0.64	1.25	780					
	0.72	1.5	790						

Зависимость коэффициента усиления от высоты критического сечения сопла  $h^*$  для смеси  $0.1\text{CO}_2 + 0.4 \text{N}_2 + 0.4 \text{He}$  при  $p_0 = 6$  атм и  $T_0 = 1500^\circ \text{K}$  показана на фиг. 3. Наблюдается максимум усиления при величине  $h^* = 0.8-1.0$  мм. Полученное в этих опытах оптимальное значение  $h^*$  использовалось затем в экспериментах с реагирующей смесью  $\text{N}_2\text{O} + \text{CO}$ .

Использование реакции закиси азота с окисью углерода для создания лазерно-активной среды в газодинамическом лазере представляет большой интерес, так как, во-первых, конечными продуктами реакции являются углекислый газ и азот-основные компоненты рабочей смеси  $\text{CO}_2$ -лазеров и, во-вторых, энергетические и кинетические особенности реакции позволяют надеяться на осуществление неравновесной химической накачки продуктов при сверхзвуковом расширении в сопле [7]. В данной работе иссле-

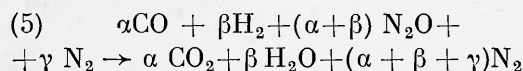
дованы условия возникновения инверсии населенностей колебательных уровней  $\text{CO}_2$  в расширяющемся потоке продуктов реакции  $\text{N}_2\text{O} + \text{CO}$  в предположении полного завершения реакции в отраженной ударной волне перед соплом.

Давление перед соплом  $p_0$  поддерживалось постоянным во всех опытах и равнялось приблизительно 10 атм. Температура  $T_0$  менялась в интервале 1800—3500° К. Тепловой эффект реакции



согласно литературным данным [19], равен 87.3 ккал/моль. Для устранения чрезмерного нагрева продуктов реакции стехиометрическая смесь  $\text{CO} + \text{N}_2\text{O}$  балластировалась химически инертным разбавителем (азотом или аргоном) в количестве до 80%. В части опытов в исходную смесь вводился молекулярный водород (до 10%) для ускорения реакции (4) [20] и для введения в продукты реакции молекул воды, являющихся дезактиватором нижнего лазерного уровня  $\text{CO}_2$ .

Таким образом, в общем виде схема реакции имела вид

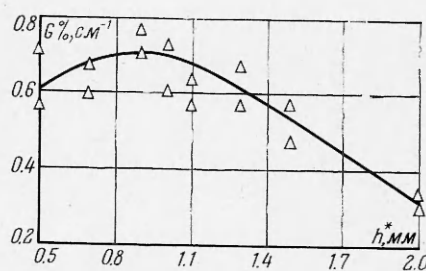


Содержание  $\text{CO}$  во всех опытах составляло 10%. Исследованы смеси с начальным содержанием водорода 0, 1, 2, 5, 10%. В [21] исходная смесь с соотношением компонент  $\text{CO} : \text{N}_2\text{O} : \text{H}_2 : \text{He} = 35 : 35 : 2 : 28$  была использована в газодинамическом лазере на продуктах газовой детонации.

Температура газа перед соплом  $T_0$  рассчитывалась, исходя из предположения о полноте химического превращения исходной смеси в области за отраженной ударной волной. Данные о задержках воспламенения исходной смеси в реакции (4) [20] и расчет времени существования горячей пробки оправдывают это предположение. В случае высокой температуры  $T_0$  учитывалась также диссоциация молекул  $\text{CO}_2$  и  $\text{H}_2\text{O}$ . В этих случаях в рабочем сечении возможно значительное содержание окиси углерода. Высота критического сечения сопла во всех опытах составляла 0.9 мм.

Результаты экспериментов приведены на фиг. 4, 5 в виде зависимости коэффициента усиления  $G$  от температуры перед соплом  $T_0$  при различных соотношениях компонент исходной реагирующей смеси. Количество водорода изменялось в различных сериях опытов. Графики на фиг. 4 представляют собой экспериментальные результаты для исходных смесей с содержанием водорода 0, 1, 2 мол. %. Соответствующие экспериментальные кривые обозначены на фиг. 4 номерами 1, 2, 3. На фиг. 5 кривые 1, 3 представляют собой результаты опытов для исходных смесей с содержанием водорода 5 и 10% соответственно. Кривая 2 на фиг. 5 показывает зависимость величины  $G$  от температуры  $T_0$  для смеси с добавкой 0.5%  $\text{H}_2$ , в которой в качестве разбавителя вместо азота применен аргон в количестве 79 мол. %.

Для всех исследованных исходных реагирующих смесей обнаружено усиление излучения с длиной волны  $\lambda = 10.6$  мкм вследствие образования инверсии населенностей в расширяющемся потоке молекул  $\text{CO}_2$  при истечении из сопла продуктов реакции (5).

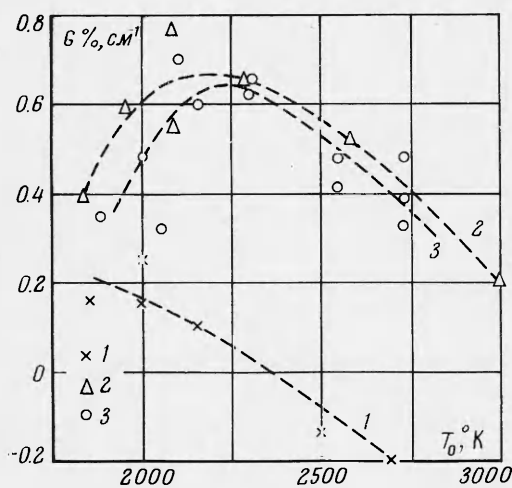


Фиг. 3

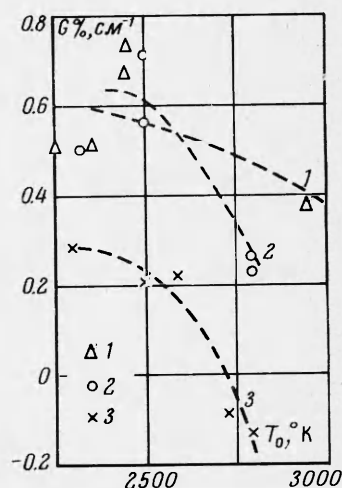
Для исходных смесей с добавкой водорода наибольшие значения коэффициента усиления получены при содержании водорода, равном 1%, наименьшие — для смеси с добавкой 10% водорода.

Сравнение с результатами для нереагирующей смеси (таблица) показывает, что в случае истечения продуктов реакции (5) усиление наблюдается при более высоких значениях температуры  $T_0$ .

Из фиг. 4 видно, что в случае исходной смеси без добавки водорода наблюдается усиление в интервале температур  $T_0 = (1850-2150)^\circ \text{K}$ . Возможно, что, несмотря на принятые меры по обезвреживанию ударной трубы



Фиг. 4



Фиг. 5

и исходной смеси, в исследуемом потоке содержались следы паров воды. В то же время нельзя исключить возможность неравновесного колебательного возбуждения  $\text{CO}_2$  или  $\text{N}_2$  в ходе реакции.

Для смеси, разбавленной 79% аргона (фиг. 5), реализуются значения коэффициента усиления, не меньшие, чем в случае разбавления исходной смеси азотом, несмотря на отсутствие дополнительного резервуара колебательной энергии, каким являлся нагретый азот. В [22,23] показано, что аргон оказывает существенное влияние на релаксационные характеристики  $\text{CO}_2$  в ударных волнах. Поэтому исследование неравновесных характеристик тройной смеси  $\text{CO}_2 + \text{N}_2 + \text{Ar}$  представляет большой интерес.

Поступила 18 IV 1974

#### ЛИТЕРАТУРА

1. Басов Н. Г., Михайлов В. Г., Ораевский А. Н., Щеглов В. А. Получение нверсной населенности в сверхзвуковом потоке бинарного газа в сопле Лавала. Ж. техн. физ., 1968, т. 38, вып. 12.
2. Колюхов В. К., Матросов И. В., Прохоров А. М., Шалунов Д. Т., Широков Н. И. Колебательная релаксация молекул  $\text{CO}_2$  и  $\text{N}_2$  в расширяющейся сверхзвуковой струе газа. Письма в ЖЭТФ, 1969, т. 10, вып. 2.
3. Gerry E. T. The gasdynamic laser. Laser Focus, 1970, vol. 6, No. 12.
4. Козлов Г. И., Иванов В. Н., Кораблев А. С. Газодинамический лазер на продуктах горения углеводородно-воздушных смесей. Письма в ЖЭТФ, 1973, т. 17, вып. 12.
5. Тальрозе В. Л. К вопросу о генерировании когерентного индуцированного излучения в химических реакциях. Кинетика и катализ, 1964, т. 5, вып. 1.
6. Джиджоев М. С., Платоненко В. Т., Хохолов Р. В. Химические лазеры. Усп. физ. н., 1970, т. 100, вып. 4.

7. Заслонко И. С., Козарко С. М., Чуриков Ю. В. О возможности протекания реакций диссоциации многоатомных молекул при быстром охлаждении в расширяющемся сверхзвуковом потоке. ПМТФ, 1973, № 2.
8. Гордицец Б. Ф., Осипов А. И., Ступоченко Е. В., Шелепин Л. А., Колебательная релаксация в газах и молекулярные лазеры. Усп. физ. н., 1972, т. 108, вып. 4.
9. Kuehn D. M., Monson D. J. Experiments with CO<sub>2</sub> Gasdynamic laser. Appl. Phys. Letter, 1970, vol. 16, No. 1.
10. Лосев С. А., Макаров В. Н., Павлов В. А., Шаталов О. П. Исследование процессов в газодинамическом лазере на ударной трубе большого диаметра. Физика горения и взрыва, 1973, т. 9, № 4.
11. Lee G., Gowen F. Gain of CO<sub>2</sub> Gasdynamic lasers. Appl. Phys. Letters, 1971, vol. 18, No. 6.
12. Хирд Г. Измерение лазерных параметров. М., «Мир», 1970.
13. Гембаржевский Г. В., Генералов Н. А., Козлов Г. И. Экспериментальные исследования коэффициента усиления света в смесях CO<sub>2</sub> + H<sub>2</sub> + He (H<sub>2</sub>O) при расширении в сверхзвуковом сопле. ПМТФ, 1973, № 4.
14. Anderson J. D., Winkler E. High temperature aerodynamics with electromagnetic radiation. Proc. IEEE, 1971, vol. 59, No. 4.
15. Никитин Е. Е. Теория элементарных атомно-молекулярных процессов в газах. М., «Химия», 1970.
16. Christiansen W., Tsongas G. Gain kinetics of CO<sub>2</sub> gasdynamic laser mixture at high pressure. Phys. Fluids, 1971, vol. 14, No. 12.
17. Anderson J. D. Time-dependent analysis of population inversions in an expanding gas. Phys. Fluids, 1970, vol. 13, No. 8.
18. Генералов Н. А., Козлов Г. И., Селезнева И. К. Об инверсной заселенности молекул CO<sub>2</sub> в расширяющихся потоках газа. Препринт Ин-та проблем. механ. АН СССР, 1971, № 2.
19. Солоухин Р. И. О кинетике воспламенения при высокотемпературном окислении закисью азота в ударных волнах. Докл. АН СССР, 1970, т. 194, № 1.
20. Drummond L. J. Shock-initiated exothermic reactions. Austr. J. Chem., 1968, vol. 21, p. 2631.
21. Бохон Ю. А., Даглетчин И. И., Марченко В. М., Прохоров А. М., Сербинов А. И., Трошин Я. К. Наблюдение эффекта генерации в газодинамическом лазере на продуктах газовой детонации. Краткие сообщения по физике, 1972, № 11.
22. Stephenson J. C., Wood R. E., Moore C. B. Temperature dependence of intramolecular vibration → vibration energy transfer in CO<sub>2</sub>. J. Chem. Phys., 1971, vol. 54, No. 7.
23. Kamimoto G., Matsui H. Vibration relaxation of carbon dioxide in argon. J. Chem. Phys., 1970, vol. 53, No. 10, p. 3990.