

# 可见光化学激光研究\*——II. 采用 F-NH<sub>3</sub>-IF 化学反应体系实现 IF 化学激光的模型

庄琦 王成栋 冯浩 张存浩

(中国科学院大连化学物理所)

## Studies of visible chemical lasers——II, Modelling of an IF chemical laser within F-NH<sub>3</sub>-IF system

Zhuang Qi, Wang Chengdong, Feng Hao, Zhang Cunhao

(Dalian Institute of Chemical Physics, Academia Sinica, Dalian)

**提要:** 本模型建立了采用 F-NH<sub>3</sub>-IF 化学反应体系实现 IF 化学激光的机制, 包括 14 个动力学过程。通过 Gear 自动积分法求得 IF(B) 和有关激发态粒子的数密度和 IF(B, v'=0, J'=21) → (X, v''=5, J''=20) 的增益系数, 以及腔对以上参数的重要影响。计算表明当腔压大于 6Torr 时才有正的增益系数, 大于 10Torr 时有可能实现激射。还讨论了产生 IF(B) 的主要传能通道。

**关键词:** 氟化碘可见光化学激光

### 一、引言

用放电泵浦和激光泵浦都已获得了可见 IF 激光<sup>[1~3]</sup>, 但用化学反应泵浦的 IF 激光到目前为止尚未实现, 它已成为短波长化学激光领域中一项颇有吸引力的研究课题。Clyne<sup>[4]</sup>认为 IF 是可能的化学激光介质。Davis<sup>[5]</sup>等根据 Clyne 报道的 IF(B) 寿命数据计算了增益系数, 计算表明当 IF(B) 为 1 mTorr 时 IFB → X 的增益系数为  $2.3 \times 10^{-3} \text{cm}^{-1}$ , 这个增益相当于  $1.0 \times 10^{-3} \text{Torr}$  IF(B), 这意味着如果化学反应能产生 1 mTorr 的 IF(B) 就有可能实现 IF 化学激光。Гашкин<sup>[6]</sup>等通过对 F-H<sub>2</sub>-NF<sub>2</sub>-IF 体系的理论分析, 认为实现 IF 化学激光是可能

的, 但需要通入 O<sub>2</sub>(<sup>1</sup>Δ), 或采用一台小型 HF 激光器, 使 NF(a) 与 O<sub>2</sub>(<sup>1</sup>Δ) 或 HF(v) 碰撞传能以获得足够的 NF(b) 粒子, 再与 IF 传能就可实现 IF 化学激光。这个方案比较具体, 但由于需另通入 O<sub>2</sub>(<sup>1</sup>Δ) 而使系统更为复杂, 甚至难以实现。

我们首次采用 F-NH<sub>3</sub>-IF 化学反应体系在实验装置上已获得了 IFB → X 荧光光谱, IF(B) 的粒子数密度达  $10^{10} \text{cm}^{-3}$ <sup>[6]</sup>。能否从理论上预测在这个化学反应体系上实现 IF 化学激光的可能性及实现的条件, 显然是十分重要的。本文报告了采用 F-NH<sub>3</sub>-IF 化学反应体系, 在不另通入其它激发态粒子的条件下, 实现 IF 化学激光的理论模型与计

收稿日期: 1987 年 12 月 25 日。

\* 国家自然科学基金资助课题。

算结果。

## 二、理论模型

本模型采用 F-NH<sub>3</sub>-IF 化学反应体系。在燃烧室中通入一定比例的 F<sub>2</sub>、H<sub>2</sub> 和 CF<sub>3</sub>I 气体, 燃烧后的气体经过超音速喷管膨胀, 获得超音速的 F+F<sub>2</sub>+IF 射流, 在副喷管中通入适量 NH<sub>3</sub> 以形成超音速 NH<sub>3</sub> 射流<sup>[6]</sup>。

为简化起见, 假设二股射流混合极快, 一出喷管即完全均匀混合, 然后进行化学反应及传能, 这样就可以建立一维的物理模型。用此模型计算了各种激发态粒子密度, 以及 IF(B, v', J') → (X, v'', J'') 跃迁增益。这些值是评定该系统能否产生激光的重要参数。

本模型包括以下动力学过程:

动力学过程	$k_i(\text{cm}^3/\text{molec})^{-1}\text{sec}^{-1}$	作者
F + NH <sub>3</sub> → NH <sub>2</sub> * + HF (1)	2.3 × 10 <sup>13</sup>	A. S. Manocha
F + NH <sub>2</sub> * → NH* + HF(v) (2)	2 × 10 <sup>13</sup>	[*]
F <sub>2</sub> + NH* → NF(a) + HF (3)	2 × 10 <sup>11</sup>	庄琦
NF(a) + HF(v) → NF(b) + HF (4)	1 × 10 <sup>11</sup>	J.M. Herbelin
F + NH* → N( <sup>2</sup> D) + HF (5)	1.5 × 10 <sup>13</sup>	W. Hack
N( <sup>2</sup> D) + NF(a) → N <sub>2</sub> (B) + F (6)	2.3 × 10 <sup>11</sup>	N. L. Rapagnani
NF(b) + IF(X) → NF + IF(B) (7)	3 × 10 <sup>13</sup>	A. T. Pritt
NH* + IF(X) → NH + IF(B) (8)	1 × 10 <sup>11</sup>	[**]
N <sub>2</sub> (B) + IF(X) → N <sub>2</sub> (A) + IF(B) (9)	6 × 10 <sup>13</sup>	A. P. Onstad
NF(a) + NF(a) → N <sub>2</sub> + 2F (10)	10 <sup>12</sup>	J. M. Herbelin
HF(v) + M → HF(v-1) + M (11)	M = NH <sub>3</sub> 1.2 × 10 <sup>14</sup>	S. R. Leone
NF(b) + M → NF + M (12)	M = HF 5.8 × 10 <sup>11</sup>	D. W. Setser
	M = NH <sub>3</sub> 5.4 × 10 <sup>10</sup>	D. W. Setser
IF(B) + M → IF + M (13)	M = F <sub>2</sub> 2 × 10 <sup>12</sup>	S. J. Docvis
IF(B) → IF(X, v'') + hν (14)	1.2 × 10 <sup>5</sup>	M. A. A. Clpne

模型的数学表达式:

$$\frac{dN_m}{dt} = \sum X_m - \sum Y_m$$

$$m = \text{F}_2, \text{F}, \text{NH}_3, \text{NH}_2^*, \text{NH}^*, \text{N}, \text{N}_2^*, \text{HF}(v), \text{HF}, \text{NF}(a), \text{NF}(b), \text{IF}(x)$$

$$\frac{dN_{\text{IF}(B)}}{dt} = \sum X_{\text{IF}(B)} - \sum Y_{\text{IF}(B)} - \alpha f$$

$$\frac{dN_{\text{IF}(x, v'')}}{dt} = \sum X_{\text{IF}(x, v'')} - \sum Y_{\text{IF}(x, v'')} + \alpha f$$

$$\frac{df}{dt} = c(\alpha - \alpha_{th})f$$

$$\alpha = \frac{\lambda^2 A_{21}}{4\pi \Delta\nu_D} \left( \frac{\ln 2}{\pi} \right)^{0.5} N_0$$

$$\times \left[ \text{IF}(B, v', J') - \frac{1}{2} \text{IF}(X, v'', J'') \right]$$

$$\Delta\nu_D = 7.16 \times 10^{-7} \nu_0 \sqrt{\frac{T}{M}}$$

从 IF(B) 到 IF(X) 的跃迁不仅有 IFB → X 的电子跃迁, 同时还有各振动态的转动能级之间的跃迁。本模型计算的是在电子、振动、转动各能级跃迁中几率最大的跃迁, 也即最强的 IF(B, v', J') → (X, v'', J'') 跃迁。

首先, 根据 IF(B, v') → (X, v'') 跃迁的 Franck-Condon 因子数据, 可以确定振动态 v' = 0 → v'' = 5 的 Franck-Condon 因子最大, 也即振动能级 0 → 5 的跃迁几率最大。然后确定最强的转动跃迁。假设转动弛豫很快,

\* 参照(1)式及(5)式, \*\* 参照(4)式  
n 为反应级数。

一定转动能级  $J$  上的粒子数  $N_J$  可以用 Boltzmann 分布来描述, 即

$$N_J = N_{\text{总}}(2J+1) \frac{hcB}{kT} \exp\left[-\frac{e_r}{kT}\right]$$

$e_r = hcBJ(J+1)$  是转动能级的能量, 故得

$$\frac{N_J}{N_{\text{总}}} = (2J+1) \left(\frac{hcB}{kT}\right) \times \exp\left[-\frac{hcB}{kT} J(J+1)\right]$$

将  $N_J$  对  $J$  取极大值, 可求得具有最大粒子数的转动量子数  $J_{\text{max}}$ :

$$J_{\text{max}} = \frac{\left[\left(\frac{2kT}{hcB}\right)^{1/2} - 1\right]}{2}$$

IF 分子的转动常数  $B$  引自文献[19], 计算得上能级  $J'_{\text{max}} = 21$ 。

### 三、结果及讨论

模型计算是用 Gear 自动积分法在 PDP 11-73 计算机上完成的, 所得结果如下:

#### 3.1 腔压对增益和粒子数密度的影响

IF( $B, v'=0, J'=21$ )  $\rightarrow$  ( $X, v''=5, J''=20$ ) 跃迁的增益和 IF( $B$ ) 的粒子数密度随腔压的提高有明显的提高, 但是非线性关系。腔压对增益的影响更为突出, 当腔压为 4 Torr 时, 增益为负值, 腔压为 6 Torr 时增益变为正值。这表明腔压低于 4 Torr 不可能实现激射, 腔压大于 6 Torr 理论上可以实现激射。具体数据为(化学物质配比 F:F<sub>2</sub>:NH<sub>3</sub>:He:IF=5:2.5:5:32:1):

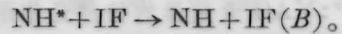
$P$ (Torr)	IF( $B$ ) (cm <sup>-3</sup> )	$\alpha_{\text{max}}$
4	$1.6 \times 10^{12}$	$-1 \times 10^{-4}$
6	$3.5 \times 10^{12}$	$7 \times 10^{-4}$
8	$6 \times 10^{12}$	$2 \times 10^{-3}$
10	$9 \times 10^{12}$	$4 \times 10^{-3}$
20	$3 \times 10^{13}$	$2 \times 10^{-2}$

#### 3.2 对产生 IF( $B$ ) 主要通道的分析

以 F:F<sub>2</sub>:NH<sub>3</sub>:He:IF=5:2.5:5:32:1,  $P=8$  Torr 计算为例得:

激发态粒子	粒子数密度 (cm <sup>-3</sup> )
NH*	$2 \times 10^{15}$
NF( $a$ )	$2 \times 10^{14}$
HF( $v$ )	$3 \times 10^{10}$
NF( $b$ )	$3 \times 10^7$
N <sub>2</sub> *	$2 \times 10^{11}$
IF( $B$ )	$6 \times 10^{12}$
IF( $X, v''$ )	$6 \times 10^{12}$

由上表数据可以看出, 当 IF( $B$ ) 粒子数密度高达  $6 \times 10^{12}$  cm<sup>-3</sup> 时, NF( $b$ ) 的粒子数密度只有  $3 \times 10^7$  cm<sup>-3</sup>, 显然 NF( $b$ ) + IF  $\rightarrow$  NF + IF( $B$ ) 的传能过程并非产生 IF( $B$ ) 的主要通道。此外, 虽然 N<sub>2</sub>\* + IF  $\rightarrow$  N<sub>2</sub> + IF( $B$ ) 的传能速率很快, 但 N<sub>2</sub>\* 的粒子数密度不够大, 只有  $2 \times 10^{11}$  cm<sup>-3</sup>, 看来也并非产生 IF( $B$ ) 的主要通道。由此推断在产生 IF( $B$ ) 过程中起重要作用的传能过程可能是



#### 符号说明

$A_{21}$ ——IF( $B$ ) 的 Einstein 自发发射系数;  $c$ ——光速;  $f$ ——光腔中通过介质的光流密度;  $h$ ——Planck 常数;  $k_i$ —— $i$  个动力学过程的速率常数;  $k$ ——Boltzmann 常数;  $M$ ——分子量;  $N_0$ ——Avogadro 常数;  $N_m$ —— $m$  组份的粒子数密度;  $X_m$ —— $m$  组份生成速率;  $Y_m$ —— $m$  组份消耗速率;  $\alpha$ ——增益系数;  $\alpha_{th}$ ——增益阈值;  $\lambda$ ——波长;  $\nu_0$ ——谱线中心频率;  $\Delta\nu_D$ ——谱线 Doppler 加宽。

#### 参 考 文 献

- 1 J. D. Eden et al., *IEEE J. Quant. Electr.*, **QE-17**, 1085 (1981)
- 2 S. J. Davis et al., *J. Chem. Phys.*, **78**, 172 (1983)
- 3 S. J. Davis et al., *J. Chem. Phys.*, **82**, 4831 (1985)
- 4 M. A. A. Clyne, I. S. McDermit, *J. Chem. Soc., Faraday Trans. II*, **74**, 1644 (1978)
- 5 A. C. Башкин et al., *Квант электр.*, **13**, 665 (1986)
- 6 庄琦 et al., *物理化学学报*, **3**, 248 (1987)
- 7 R. A. Durie, *Canadian J. Phys.*, **44**, 337 (1966)