

FUENTE DE EMISION LASER EN 11 μm

J. Codnia, J. J. Merino, M. L. Azcárate

CENTRO DE INVESTIGACION EN LASERES Y APLICACIONES CEILAP (CITEFA-CONICET)

ZUFRIATEGUI 4380 - (1603) - VILLA MARTELLI - BUENOS AIRES - ARGENTINA

e-mail: lazcarate@citefa.gov.ar

INVESTIGACIONES APLICADAS S. E.

CASILLA DE CORREO 961. F. P. MORENO 1089. (8400) SAN CARLOS DE BARILOCHE. RÍO NEGRO- ARGENTINA

e-mail: jmerino@invap.com.ar

Se construyó un láser de CO_2 TEA, de funcionamiento estanco, pulsado, sintonizable mediante una red de difracción. Se diseñó y construyó un sistema para la recuperación del $^{13}\text{CO}_2$ de la mezcla gaseosa, dado el elevado costo del mismo y la dificultad para obtenerlo. Se hace circular la carga del láser a través de un recipiente inmerso en N_2 líquido a fin de condensar el $^{13}\text{CO}_2$ y evacuar el resto. Se aísla el contenido del recipiente mediante válvulas adecuadas y se deja evolucionar hasta alcanzar la temperatura ambiente. En la próxima carga se expande el volumen de $^{13}\text{CO}_2$ contenido en el recipiente al láser y se completa la carga con el agregado de $^{13}\text{CO}_2$ del cilindro principal. Se encontró la relación óptima de gases de las mezclas ($^{12}\text{CO}_2$, $^{14}\text{N}_2$ y He) y ($^{13}\text{CO}_2$, $^{14}\text{N}_2$ y He) a fin de maximizar la energía de salida por pulso. Se midieron las energías de salida por pulso para las transiciones ($J = 4 - 48$) de las ramas rotacionales P de las bandas vibracionales $(00^0_1) - [10^0_0, 02^0_0]_{I, II}$ del $^{12}\text{CO}_2$, (10,4 y 9,4 μm , respectivamente) y del $^{13}\text{CO}_2$, (11,0 y 9,8 μm , respectivamente). Se caracterizó el perfil temporal y espacial del pulso.

A sealed, grating tunable TEA CO_2 laser was built. A $^{13}\text{CO}_2$ recovery system from the gas mixture was designed and built. The laser gas mixture is circulated through an 304L stainless steel cold trap immersed in a liquid N_2 bath in order to condense $^{13}\text{CO}_2$ and pump the non-condensable gases. The cold trap is isolated and allowed to reach room temperature. In the next laser gas fill, the trap content is expanded into the laser gas reservoir, and completed from the cylinder if necessary. The gas mixture ratios ($^{12}\text{CO}_2$, $^{14}\text{N}_2$ and He) y ($^{13}\text{CO}_2$, $^{14}\text{N}_2$ and He) for maximum output energy were determined. The output energies for the ($J = 4 - 48$) transitions of the P rotational branches of the $(00^0_1) - [10^0_0, 02^0_0]_{I, II}$ for $^{12}\text{CO}_2$, (10,4 and 9,4 μm , respectively) and for $^{13}\text{CO}_2$, (11,0 and 9,8 μm , respectively) vibrational bands were measured. The pulse temporal and spatial profiles were characterized.

I- INTRODUCCION

Los láseres de CO_2 TEA poseen varias características que los hacen atractivos para estudios de cinética molecular. Entre estas se encuentran la alta potencia de pico con valores de varios MW y la longitud de onda de emisión en el infrarrojo medio alrededor de 10 μm . Las frecuencias vibracionales de muchas moléculas de interés atmosférico se encuentran en esta región del espectro electromagnético. En particular, en nuestro laboratorio estudiamos la cinética de reacciones de radicales clorofluorocarbonados con oxígeno y ozono. Los radicales se producen a partir de la excitación y disociación multifotónica IR de compuestos clorofluorocarbonados con un láser de CO_2 TEA sintonizado a una longitud de onda resonante con un modo vibracional particular de la molécula.

El láser de CO_2 posee dos bandas de emisión denominadas bandas I y II. En el caso de utilizar el dióxido de carbono isotópico $^{12}\text{C}^{16}\text{O}_2$ estas bandas están centradas en 10,6 μm y 9,4 μm , respectivamente. Por otro lado, utilizando $^{13}\text{C}^{16}\text{O}_2$ dichas bandas se desplazan a 10 μm y 11 μm , respectivamente, lo que permite extender el rango de emisión del láser y estudiar otras moléculas clorofluorocarbonadas con bandas de absorción en la región entre 870 cm^{-1} y 910 cm^{-1} .

En la Reunión Anual de la Asociación Física Argentina de 1996, uno de los trabajos que presentamos fue la construcción de un láser de $^{12}\text{CO}_2$ TEA, sintonizable, de funcionamiento estanco y disparado por una válvula Thyatron. En las conclusiones se proponían

algunas mejoras del equipo y la utilización de $^{13}\text{CO}_2$ con la finalidad de obtener una fuente de emisión láser en 11 μm .

En este trabajo se presenta la caracterización de la emisión de este láser con $^{13}\text{CO}_2$. Para ello se mejoró la estanqueidad del sistema de gases y se diseñó y construyó un sistema de recuperación del dióxido de carbono de la mezcla.

II- PARTE EXPERIMENTAL

Una descripción detallada del láser de $^{12}\text{CO}_2$ TEA puede encontrarse en la referencia 1. Brevemente, la cavidad esta conformada por un espejo cóncavo parcialmente reflector de 10 m de radio de curvatura, 85% de reflectividad y una red de difracción de 150 líneas/mm con ángulo de blaze para 10 μm en montaje Littrow separados por una distancia de 1,25 m. El láser opera a una frecuencia de repetición entre 1 y 2 Hz. La mezcla de gases óptima para el $^{12}\text{CO}_2$ que permite maximizar la energía de salida por pulso en las transiciones ($J = 4 - 48$) de las ramas rotacionales P de las bandas vibracionales I, $[(00^0_1) - (10^0_0)]$, y II, $[(00^0_1) - (02^0_0)]$, del $^{12}\text{CO}_2$, (10,4 y 9,4 μm , respectivamente), posee la siguiente composición:

$^{12}\text{CO}_2$:	130 torr (23 %)
N_2	:	130 torr (23 %)
He	:	300 torr (54%)
Presión total:		560 torr

En estas condiciones la máxima energía del pulso emitida en las bandas I y II, 10,5 μm y 9,5 μm , es de 2 J y 1,6 J, respectivamente, medida con un detector piroeléctrico GENTEC.

SISTEMA DE RECUPERACION DEL $^{13}\text{CO}_2$ DE LA MEZCLA

Se diseñó y construyó un sistema para la recuperación del $^{13}\text{CO}_2$ de la mezcla gaseosa, dado el elevado costo del mismo y la dificultad para obtenerlo. El cilindro de recuperación se construyó en acero inoxidable 304L y tiene una capacidad de 1200 cm^3 . Se realizó una prueba hidráulica elevando la presión hasta 60 atm. Se utilizaron dos válvulas de fuelle con asiento encapsulado de PCTFE, Hoke, serie 4500, para la admisión y evacuación de la mezcla gaseosa. Consta además de un manómetro tipo Bourdon, L'Air Liquide, con un rango operativo de 0-30 bar.

El $^{13}\text{CO}_2$ se encuentra en cilindros de 1 litro SPT. Una carga completa del láser requiere el contenido de 4 cilindros. Este se trasvasó a través de una línea de alto vacío al cilindro de recuperación el cual se hallaba sumergido en un baño de N_2 líquido. La Figura 1 muestra el esquema del dispositivo experimental utilizado.

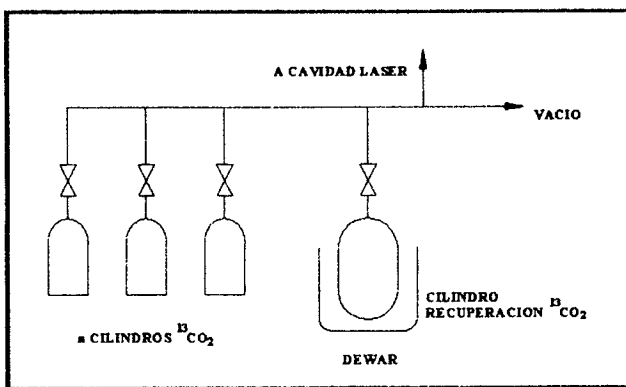


Figura 1

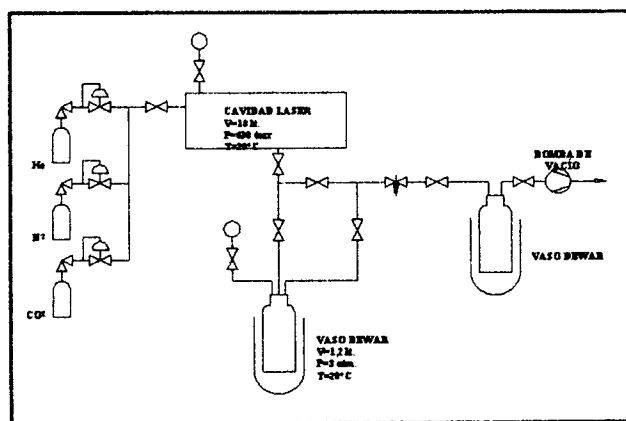


Figura 2

Para realizar la carga del láser, inicialmente se expande el volumen de $^{13}\text{CO}_2$ contenido en el cilindro de recuperación al recipiente del láser que contiene el medio activo hasta alcanzar la presión deseada. Luego se le agregan las presiones apropiadas de N_2 y He desde los respectivos cilindros. Para recuperar el $^{13}\text{CO}_2$ de la mezcla

se hace circular la carga del láser a través del cilindro de recuperación y de una trampa adicional inmersos ambos en N_2 líquido a fin de condensar el $^{13}\text{CO}_2$ y evacuar el resto. Luego, el contenido del cilindro de recuperación se aísla mediante válvulas adecuadas y se deja evolucionar hasta alcanzar la temperatura ambiente. Una trampa adicional, construida con vidrio Pyrex, se coloca con el fin de recuperar el $^{13}\text{CO}_2$ que pudiera ser arrastrado por la parte de la mezcla que no condensa. La Figura 2 muestra el esquema del láser con el cilindro de recuperación.

III- RESULTADOS

OPTIMIZACION DE LA RELACION DE GASES DE LA MEZCLA

Se midió la energía del pulso del láser para distintas presiones parciales de los tres gases y presiones totales de la mezcla. Se realizaron 35 mediciones de la energía de emisión vs presión parcial de $^{13}\text{CO}_2$, N_2 , He y presión total en los siguientes rangos:

$^{13}\text{CO}_2$: 30 - 120 torr.
N_2	: 90 - 230 torr.
He	: 120 - 440 torr.
Presión total	: 370 - 690 torr.

con el láser sintonizado en la línea P(24) de la banda I correspondiente a 11,2 μm . Debido al comportamiento parabólico de la energía con cada una de las tres variables independientes se propuso un desarrollo en serie de Taylor hasta el segundo orden que permita ajustar, mediante regresión no lineal, las mediciones a fin de obtener la terna ($^{13}\text{CO}_2$, N_2 , He) que producía la máxima energía de salida del láser. El resultado de estas mediciones se observa en la Figura 3 donde se muestra la energía medida, el ajuste con la función propuesta y el error relativo entre el ajuste y las mediciones. No se observó ninguna correlación entre el error relativo y las tres variables involucradas. Por otra parte, el error relativo no superó el 5%. Las presiones parciales y total óptimas fueron:

$^{13}\text{CO}_2$: 70 torr (11,1%)
N_2	: 160 torr (25,4%)
He	: 400 torr (63,5%)
Presión total	: 630 torr

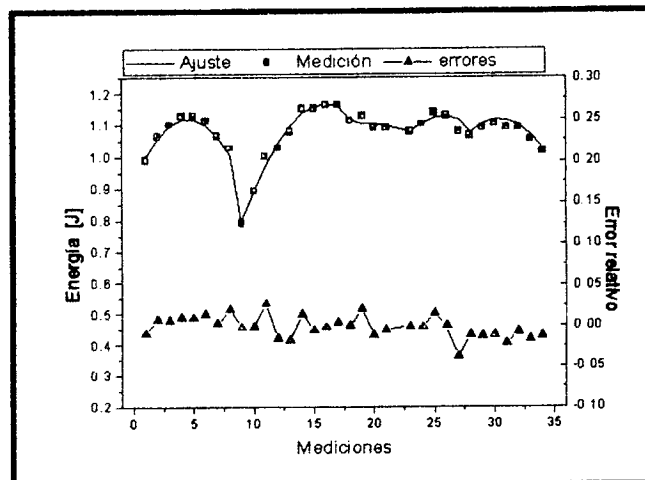


Figura 3

En el láser de $^{13}\text{CO}_2$ se observa un incremento en la proporción de N_2 respecto del CO_2 debido a un bombeo menos eficiente dado por la desintonía entre el primer nivel vibracional del N_2 y el nivel superior del láser. Es importante destacar que al variar la presión de He no llegó al valor máximo. Esto se debe a que al acercarse la presión total de la mezcla a la atmosférica, las ventanas dejaron de sellar correctamente y la energía del pulso disminuyó por variación de la presión total pulso a pulso.

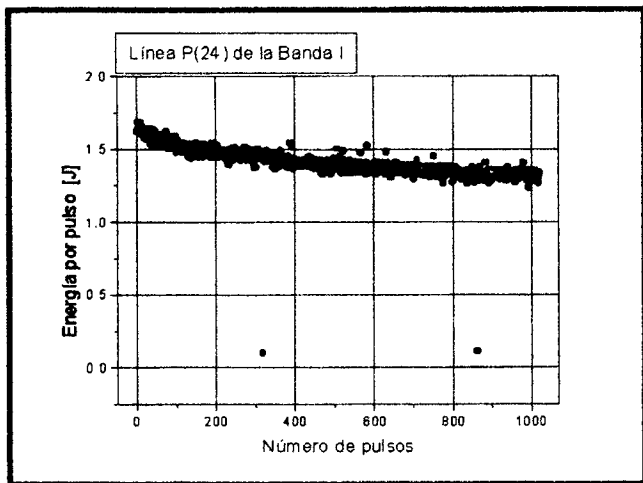


Figura 4

ESTABILIDAD PULSO A PULSO EN LA ENERGIA DE SALIDA

Con el fin de determinar la estabilidad en la emisión pulso a pulso y para períodos largos de operación se midió la energía por pulso para 1000 pulsos. El resultado de estas mediciones se muestra en la Figura 4. Allí se observa una caída inicial de la misma menor que el 10 % durante los primeros 100 pulsos debida a la estabilización térmica de la mezcla. Luego se ve una variación más lenta, de alrededor de 100 μJ por pulso, debida al deterioro de la mezcla al producirse la descomposición del $^{13}\text{CO}_2$ y la subsecuente reacción de los productos con el N_2 .

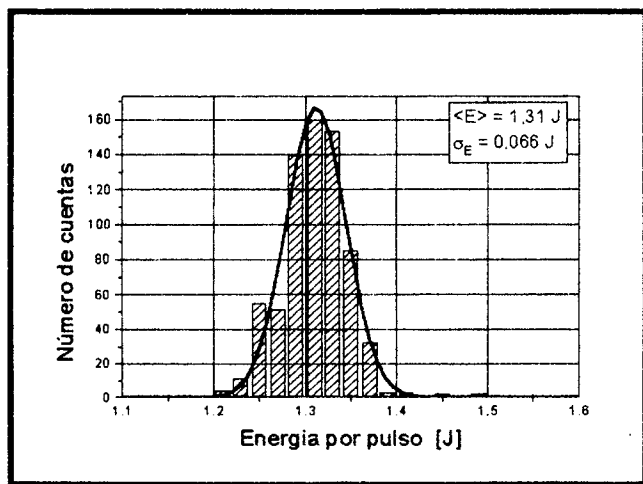


Figura 5

Independientemente del deterioro de la mezcla las fluctuaciones pulso a pulso de la energía de salida del láser resultaron ser del 5 % como se muestra en la Figura 5.

CARACTERIZACIÓN DE LA MEZCLA DE GASES

Se realizó un análisis cualitativo de la mezcla de gases luego de varias horas de funcionamiento del láser con el fin de caracterizar los productos de degradación de la misma. La Figura 6 presenta un espectro IR de una muestra de la mezcla de gases luego de varias horas de funcionamiento realizado con un espectrofotómetro FTIR, Perkin Elmer, System 2000 con una resolución de 1 cm^{-1} y una longitud de camino óptico de 10 cm. En él se observan trazas de CO , NO , NO_2 y N_2O , cuyo efecto es la disminución de la energía de emisión. La banda alrededor de 1400 cm^{-1} corresponde al NaNO_3 formado en la ventana de la celda a partir de la reacción del NO_2 con el ClNa durante el análisis de la muestra.

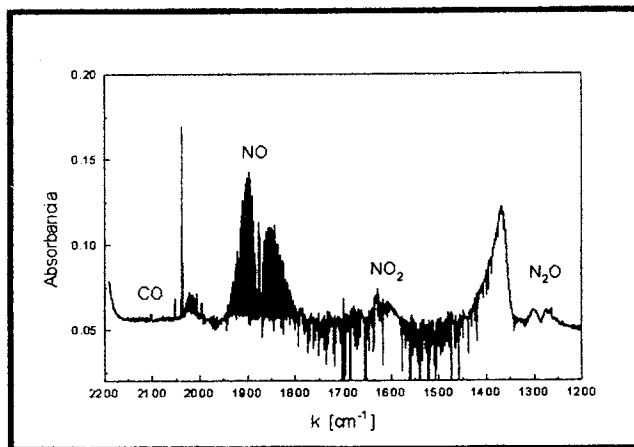


Figura 6

MEDICIONES DE LA ENERGIA DE SALIDA PARA CADA LINEA DE EMISION DEL LASER CARGADO CON $^{13}\text{CO}_2$

Una vez obtenida la mezcla que permite obtener la máxima energía de salida se procedió a medir la energía por pulso para las distintas líneas de emisión en las bandas I y II, presentándose los resultados de las mismas en las Figuras 7 y 8, respectivamente. Se incluyeron también los valores obtenidos con el mismo láser con $^{12}\text{CO}_2$, para su comparación. En la banda I del $^{13}\text{CO}_2$, la primera línea corresponde a la P(4), $910,28 \text{ cm}^{-1}$, y la última a la P(48), $870,48 \text{ cm}^{-1}$, correspondientes a $10,99 \mu\text{m}$ y $11,49 \mu\text{m}$, respectivamente. Ambas mezclas isotópicas poseen un comportamiento similar con la línea de emisión decayendo fuertemente la energía de salida en las colas del espectro. Dado que se pretende extender el rango de emisión del láser a las longitudes de onda más largas se procedió a optimizar la energía de emisión en el rango comprendido entre las líneas P(38) y P(44) de la banda I. Para ello se varió la reflectividad del acoplador de salida entre el 80 y el 90 % y se variaron también las proporciones de los gases en la mezcla. Se comprobó que con un acoplador de salida de 85% de reflectividad y la proporción de gases en la mezcla óptima descrita en

anteriormente se obtenía la máxima energía de emisión en dichas líneas.

La Tabla 1 muestra la energía de salida obtenida para las líneas P(38) – P(44) de la banda I con esta nueva configuración y una tensión de 35 KV en el capacitor involucrado en la descarga.

Tabla 1

Línea Banda I	Energía (J)
P(38)	1,0
P(40)	0,9
P(42)	0,7
P(44)	0,6

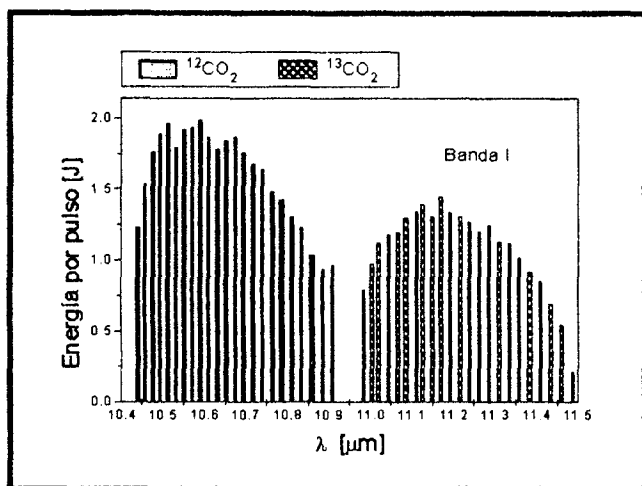


Figura 7

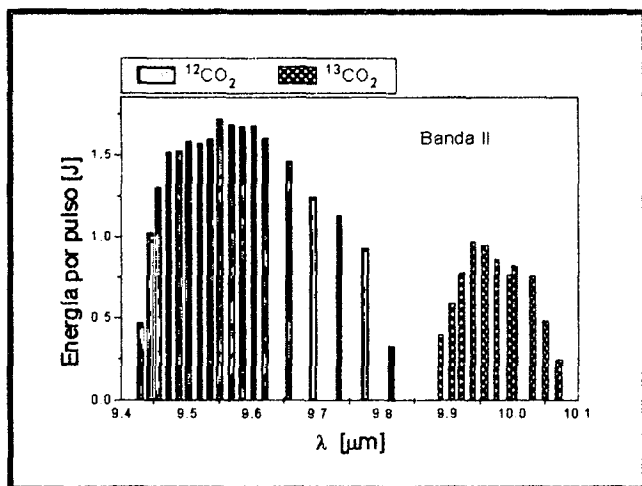


Figura 8

VARIACION DE LA ENERGIA CON LA TENSION

El mecanismo de bombeo en este tipo de láseres es el bombeo por impacto electrónico directo producido por una descarga eléctrica transversal. La energía de salida del láser aumenta con la energía depositada en la descarga y, por lo tanto, con la tensión sobre el capacitor involucrado en dicha descarga. En la Figura 10 se muestra el incremento en la energía de salida del láser al aumentar la tensión sobre el capacitor medida con el láser sintonizado en la línea P(18) de la banda I. Se obtuvo un

incremento de 0,05 J por KV y se observa que, dentro del rango de tensiones con las que se trabajó, no se alcanza una saturación de la energía de salida típica en este tipo de láseres. Se observó un incremento similar en las líneas P(38) – P(44) de la banda I.

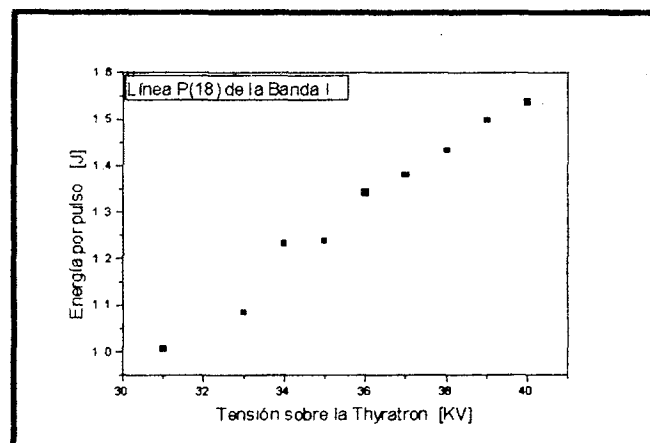


Figura 10

PERFIL TEMPORAL DEL PULSO

En la Figura 11 se muestra la evolución temporal del pulso medida con un detector rápido de Ge y un osciloscopio digital HEWLET PACKARD HP54510A con 10 ns de tiempo entre muestras. Se observa la forma característica en este tipo de láseres con una aguja de 70 ns de ancho a mitad de altura y una cola de 2,5 μs correspondiente al bombeo del N₂. El 50 % y el 80 % de la energía del pulso se encuentran en los primeros 500 ns y 1,5 μs, respectivamente.

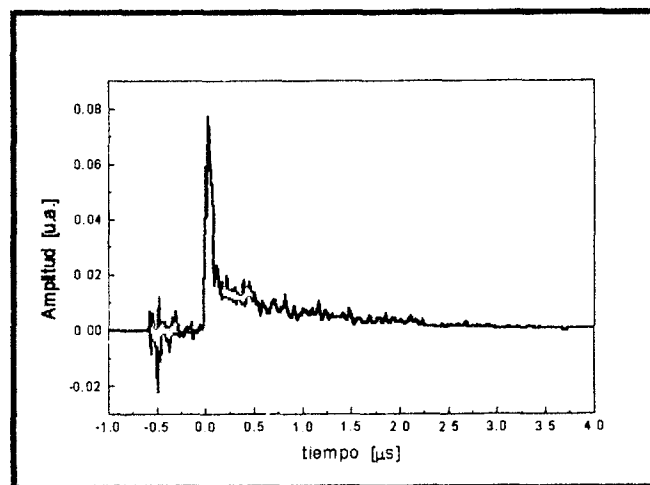


Figura 11

PERFIL ESPACIAL DEL PULSO

El perfil espacial del pulso determinado observando con una cámara CCD la imagen producida en un papel térmico, es del tipo tophat, multimodo, y se muestra en la Figura 12. El área de la sección transversal del mismo es de 3,1 cm², medida a una distancia de dos metros del acoplador de salida. La divergencia del haz en 1,2 mrad.

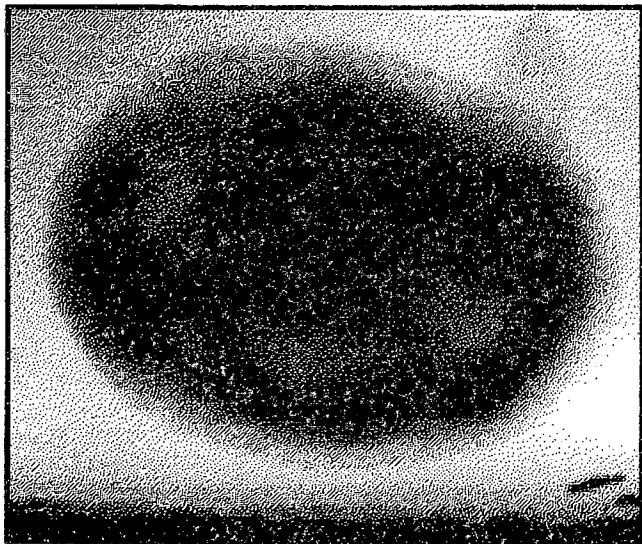


Figura 12

CONCLUSIONES

Se diseñó y construyó un sistema para la recuperación del $^{13}\text{CO}_2$ de la mezcla gaseosa simple y de fácil uso.

Se encontró que la relación óptima de gases que permite obtener la máxima energía de salida por pulso en el láser de $^{13}\text{CO}_2$ es distinta que la obtenida para el $^{12}\text{CO}_2$.

Se midieron las energías de salida por pulso para las transiciones ($J = 4 - 48$) de las ramas rotacionales P de las bandas vibracionales:

	Banda I ($00^01 - 10^00$)	Banda II ($00^01 - 02^00$)
$^{12}\text{CO}_2$	10,6 μm	9,4 μm
$^{13}\text{CO}_2$	11,0 μm	9,8 μm

Se determinó una disminución de la energía de 100 μJ por pulso producida por el deterioro de la mezcla al descomponerse el CO_2 .

Se encontraron trazas de CO , NO , NO_2 y N_2O como productos de la degradación de la mezcla luego de varias horas de funcionamiento.

Se determinó un fuerte crecimiento de la energía con la tensión de alimentación de $0,05 \text{ J KV}^{-1}$.

Se caracterizó el perfil temporal y espacial del pulso.

Se optimizó la energía de emisión en la cola de la banda I obteniéndose 1 J en la P(38) y 0,65 J en la P(44) con $^{13}\text{CO}_2$ con una tensión de 35 KV. La disminución en la energía de salida por pulso al cambiar de $^{12}\text{CO}_2$ a $^{13}\text{CO}_2$ obtenida en estas experiencias muestra una excelente concordancia con la reportada por McAlpine et al² con un láser CO_2 pulsado con una configuración totalmente diferente y por Feed et al³ con láseres de CO_2 continuos y sellados.

REFERENCIAS

- 1- D. Petillo, J. Codrnia y M. L. Azcárate. *Anales AFA*, 8, 34 (1996).
- 2- a) R. D. McAlpine. Report of Chemistry Branch. Chalk River Nuclear Laboratories, Chalk River, Ontario, Canada (1984).
b) R. D. MacAlpine, J. W. Goodale, D. K. Evans. *Can. J. Chem*, 63, 2995-3000, (1985).
- 3- a) L.E. Freed, C. Freed y R. G. O'Donnell, *IEEE J. Quantum Electron*, 18, 1229 (1982).
b) C. Freed. "Tunable Lasers Handbook", ed. F. J. Duarte. Academic Press. New York (1995), p. 63.