

文章编号: 1001-4322(2004)11-1365-05

化学反应与饱和模型对化学氧碘激光性能的影响*

胡利民, 申义庆, 高 智

(中国科学院 力学研究所 LHD 实验室, 北京 100080)

摘 要: 将速率方程(RE)模型与化学动力学模型相结合,讨论了增益饱和模型与化学反应系统对 COIL 性能的影响。流动为预混的一维模型,考虑了 10 种成分和 21 个化学反应,分析计算了未分解碘分子,激发态氧产率,水含量以及温度等因素对 COIL 性能的影响。计算结果表明,碘流量过多,混合和反应过程中消耗大量能量,碘流量过低,导致粒子数反转和增益过低,对于能量的提取不利。

关键词: 化学氧碘激光(COIL); 速率方程(RE)模型; 化学动力学模型

中图分类号: TN248.5 **文献标识码:** A

氧碘激光是通过电子跃迁发射能量的化学激光,它的波长较短,为 1.315 μm ,处于通过光纤传输吸收率较低的范围,且操作方便,对环境没有污染,因此化学氧碘激光(COIL)不仅在国防上,在工业界同样有着广阔的应用前景,因而成为热门课题。

对于化学反应系统,Perram 等^[4]给出的“标准的”COIL 反应系统的反应多达 53 个,Perram 还在另一篇文献[5]中将反应简化到 13 个并与 53 个反应的系统进行了比较,结论是在典型操作条件下,13 个反应的化学动力学系统基本上能够反映 53 个反应的化学动力学系统的组分浓度变化情况。Carroll^[6]和 Paschkewitz^[7]等考察了不同反应系统的影响,认为 8 个反应的系统对增益和功率的预测偏高。文献[7]指出 COIL 中通用的 21 反应系统化学动力学模型较适用于当前的实验条件,因此选取文献[7,8]的 10 种成分和 21 个反应的化学反应系统。

增益饱和模型对于性能的预测也是非常重要的。Zagidullin 等^[9]提出的增益饱和模型,虽然能够考虑多种因素的影响,但由于其复杂性,应用并不广泛。在一些分析模型中,低压极限模型简单且可由此得到分析解,因而使用较多^[1-3]。但我们尚未见到把增益饱和模型与化学反应系统以及简化流场模型相结合来考察 COIL 功率输出的分析计算文献,由此本文应用速率方程(RE)模型^[1,10,11]对 COIL 进行了功率计算。另外本文还考察了某些组分的含量对反应和能量提取过程的影响,这些对实验设计以及进一步详细的数值计算均具有较高的参考价值。

1 化学反应系统和增益饱和模型

文献[7]对化学反应系统作过详细的研究,本文的计算采用文献[8]的 21 个反应模型,其中的反应速率常数也参考了文献[5~7]。计算将流动简化为一维,且在进入光腔时已经充分混合,温度、压力以及流动速率为常数。表 1 列出了本文化学动力学模型的反应系统及其反应速率常数,包括 $\text{O}_2(^1)$, $\text{O}_2(^3)$, I , I^* , H_2O , He , Cl_2 , I_2 , I_2^* 等 10 种成分和 21 个反应。对于碘分子全部分解的情况,化学反应系统简化为 8 种成分和 13 个反应(1~12 及 21)。

表 1 中不参与激光发射的各气体成分 X_i 之间的反应可用以下的通式表示



不参与激光发射的气体成分单位体积中第 i 组元浓度(用 $[X_i]$ 表示)的生成速率为

$$u \frac{\partial [X_i]}{\partial x} = \sum_{r=1}^{21} (n_r - n_i) k_r \prod_{i=1}^{10} [X_i]^{n_i} \quad (2)$$

* 收稿日期:2003-10-22; 修订日期:2004-05-25

基金项目:国家自然科学基金项目资助课题

作者简介:胡利民(1973—),女,湖南省双峰县人,计算流体力学专业在读博士,主要从事氧碘化学激光的理论和计算研究;E-mail: musec@sina.com。

Table 1 Reaction system and rate constants

表 1 化学反应及其反应速率常数

reaction no. r	reaction equation	rate constant $k_r/(\text{mL} \cdot \text{s}^{-1})$
1	$\text{I} + \text{O}_2(^1) \rightarrow \text{I}^* + \text{O}_2(^3)$	$2.33 \times 10^{-8}/T$
2	$\text{I}^* + \text{O}_2(^3) \rightarrow \text{I} + \text{O}_2(^1)$	$3.11 \times 10^{-8}/T^* \exp(-401.4/T)$
3	$\text{O}_2(^1) + \text{O}_2(^1) \rightarrow \text{O}_2(^3) + \text{O}_2(^1)$	2.7×10^{-17}
4	$\text{O}_2(^1) + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{O}_2(^1) + \text{H}_2\text{O}$	6.7×10^{-12}
5	$\text{O}_2(^1) + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{H}_2\text{O} + \text{O}_2(^3)$	4×10^{-18}
6	$\text{O}_2(^1) + \text{O}_2(^3) \rightarrow \text{O}_2(^3) + \text{O}_2(^3)$	1.6×10^{-18}
7	$\text{O}_2(^1) + \text{He} \rightarrow \text{O}_2(^3) + \text{He}$	8×10^{-21}
8	$\text{I} + \text{O}_2(^1) \rightarrow \text{I} + \text{O}_2(^3)$	5×10^{-14}
9	$\text{I}^* + \text{O}_2(^1) \rightarrow \text{I} + \text{O}_2(^1)$	1.1×10^{-13}
10	$\text{I}^* + \text{O}_2(^1) \rightarrow \text{I} + \text{O}_2(^1)$	1.1×10^{-13}
11	$\text{I} + \text{I}^* \rightarrow \text{I} + \text{I}$	1.6×10^{-14}
12	$\text{I}^* + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{I} + \text{H}_2\text{O}$	2×10^{-12}
13	$\text{I}_2 + \text{O}_2(^1) \rightarrow 2\text{I} + \text{O}_2(^3)$	3.9×10^{-11}
14	$\text{I}_2^* + \text{O}_2(^1) \rightarrow 2\text{I} + \text{O}_2(^3)$	3×10^{-10}
15	$\text{I}_2 + \text{O}_2(^1) \rightarrow \text{I}_2 + \text{O}_2(^1)$	1.6×10^{-11}
16	$\text{I}_2 + \text{O}_2(^1) \rightarrow \text{I}_2^* + \text{O}_2(^3)$	7×10^{-15}
17	$\text{I}_2^* + \text{O}_2(^3) \rightarrow \text{I}_2 + \text{O}_2(^3)$	4.9×10^{-12}
18	$\text{I}_2^* + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{I}_2 + \text{H}_2\text{O}$	7×10^{-11}
19	$\text{I}_2^* + \text{He} \rightarrow \text{I}_2 + \text{He}$	9.8×10^{-12}
20	$\text{I}_2 + \text{I}^* \rightarrow \text{I} + \text{I}_2^*$	3.8×10^{-11}
21	$\text{O}_2(^1) + \text{Cl}_2 \rightarrow \text{O}_2(^3) + \text{Cl}_2$	6×10^{-18}
radiation	$\text{I}^* + h \nu \rightarrow \text{I} + 2h\nu$	5s^{-1}

式中： r 是化学反应的序号； n_i 、 n_i' 分别为消耗和生成反应中第 r 反应第 i 组元的当量比系数； k_r 表示第 r 反应的速率常数； u 为气流速度； x 为流向坐标。

关于碘原子的布居数，有

$$n_1 + n_2 = n \quad (3)$$

式中： n_1 、 n_2 分别为基态和激发态碘原子（或称上下能级）的布居数； n 为上下能级碘原子的总布居数。若认为碘分子在进入光腔以前已分解完毕，则碘原子总量 n 保持不变；如果考虑未分解碘分子存在，则 n 随碘分子的分解而增加。

对参与激光发射的基态和激发态碘原子的浓度变化，通常采用如下的激光上下能级布居数守恒方程

$$\begin{cases} u \frac{\partial n_2}{\partial x} = k_q n_1 + k_p n_2 - (k_{10} + k_{20}) (n_2 - n_1) I / (h\nu) \\ u \frac{\partial n_1}{\partial x} = -k_q n_1 + k_p n_2 + (k_{10} + k_{20}) (n_2 - n_1) I / (h\nu) + k_s \end{cases} \quad (4)$$

利用等增益模型^[10]， $u \frac{\partial n_2}{\partial x} = 0$ ，由方程组(4)，得到耗损强度关系^[11]，即速率方程的增益饱和关系为

$$g = K n \frac{\sqrt{\text{erfc}(\frac{I}{\tilde{I}})} \exp(-\frac{I}{\tilde{I}})}{1 + I/\tilde{I} \sqrt{\text{erfc}(\frac{I}{\tilde{I}})} \exp(-\frac{I}{\tilde{I}})} \quad (5)$$

式中： K 是与能级简并度有关的常数； A 为与压力相关的受激发射截面积； ω_0 为线形中心的频率； V 为 Voigt 线形函数^[10,11]； I 为光强；参数 $K = (k_q - k_p) / (k_q + k_p)$ ； $k_q = k_1[\text{O}_2(^1)]$ ； $k_p = k_2[\text{O}_2(^3)] + k_9[\text{O}_2(^2)] + k_{10}[\text{O}_2(^1)] + k_{11}n_1 + k_{12}[\text{H}_2\text{O}] + k_{20}[\text{I}_2]$ ； $g = K n \sqrt{\frac{A}{1 + I/\tilde{I}}}$ 为小信号增益系数； $\tilde{I} = 2h\nu(k_q + k_p) / (3A)$ 为饱和光强； k_s 为由于碘分子分解增加的碘原子的速率分布。此时低压极限增益饱和关系为

$$g = \frac{K n A}{1 + I/\tilde{I}} \quad (6)$$

在近共振传能为动态平衡假设下， $\text{O}_2(^1)$ 浓度随距离的变化率为

$$u \frac{dY}{dx} = -\frac{gI}{h[\text{O}_2]} - k_c \quad (7)$$

式中： $Y = [\text{O}_2(^1)] / [\text{O}_2]$ 为单重态氧的产率（用括号 $[\cdot]$ 表示粒子浓度， $[\text{O}_2]$ 表示所有各能级氧分子浓度之

和); $k_c = (2k_3[O_2(^1)] + k_5[H_2O] + k_6[O_2(^3)] + k_7[He] + k_8n_1 + k_{10}n_2 + k_{14}[I_2^*] + k_{16}[I_2] + k_{21}[Cl_2])[O(^1)] + (k_9[O_2(^1)] + k_{10}[O_2(^1)] + k_{11}[I] + k_{12}[H_2O]) + k_{20}[I_2][I^*] - (k_{15}[I_2] + k_4[H_2O])[O_2(^1)]$ 为化学反应消耗 $O_2(^1)$ 的速率。(5)、(7) 两式相结合即可求出产率 Y 、光强 I 等随流向的变化。认为碘原子 I 和 I^* 的浓度在各位置均满足近共振反应的平衡关系。

功率可由下式计算^[10]

$$P = \text{extr} L H \int_0^{l_r} g I dx \quad (8)$$

式中: extr 为光腔反射镜的效率; L 为沿光轴方向增益介质的长度; H 为增益介质的高度; l_r 为光腔沿轴线的长度。假设光腔为 Fabry-Perot 谐振腔, 则 g 等于光腔的阈值增益, 且沿长度方向为一定值^[10]。

2 结果与讨论

利用文献[8]所给出的实验和计算数据对 COIL 进行计算。反射镜的提取效率, 耦合输出镜的散射率, 衍射损失率等均取文献[1, 12]给出的参数。光腔内气流参量条件为: 温度 $T=167K$, 入口压力 $p = 4 \times 133.3Pa$, 入口小信号增益 $g_0 = 0.006 \text{ cm}^{-1}$, 入口激发态氧的产率 $Y_0 = 0.42$, 不考虑碘分解的影响时认为碘已全部分解。全部氧的流量 $Q = 1.395 \text{ mol/s}$, 稀释比约为 $He : O_2 = 4 : 1$, I_2 和 O_2 的流量比为 $Q(I_2) / Q(O_2) = 0.0158$, 水、氯气的粒子浓度均为氧的 20%, 气流速度 $u = 84 \text{ cm/s}$ ^[3]。由以上数据计算得加宽参数 $\gamma = 0.08$ 。

图 1 为本文 RE 模型的结果, 实验结果, 及文献[1, 2]理论计算结果的比较。本文 RE 模型的结果稍低于文献[2]低压极限模型的结果, 也低于文献[1]仅考虑泵浦及其逆反应而忽略其他反应影响的结果, 而更接近于实验值。比较本文 RE 模型和文献[2]低压极限的结果, 当阈值增益较低时, 两模型几乎没有差别; 当阈值增益较高时, 两模型的功率提取存在明显的差别。

图 2 为考虑不同反应体系时, 通过光腔段但不存在功率输出时激发态氧产率的变化, 以及不存在功率输出时化学能对能量的损耗情况。图中各曲线对应的反应系统 1~5 分别为: 存在未分解的碘分子(含量为已分解碘分子的 20%)及水(占有氧含量的 20%); 含碘分子但不含水; 含水但不含碘分子; 只考虑水对激发态碘原子 I^* 的淬灭, 以及氧碘近共振能反应及激光发射, 不考虑其他淬灭反应; 没有水但考虑其他成分反应的影响。由图可见, 当存在未分解的碘分子时, 产率下降较快, 尤其是与水同时发生作用时下降最快; 在本计算的条件下, 碘分子的存在对产率的影响比水的影响要大得多; 当不含水时, 其他反应对激发态氧的淬灭作用也不容忽视。

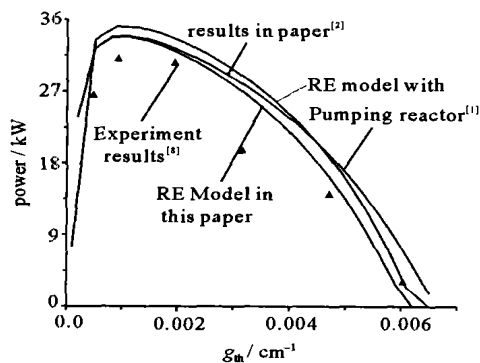


Fig. 1 Results of RE model compared with results of experiments^[8] and paper[1, 2]

图 1 RE 模型结果与实验^[8]和文献[1, 2]结果的比较

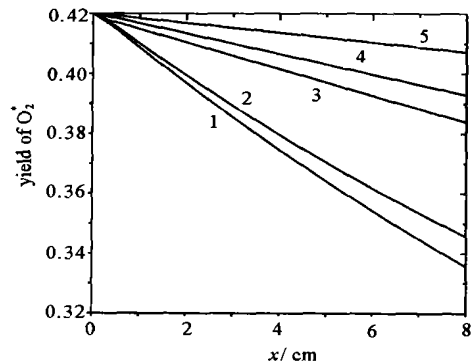


Fig. 2 Effect of different reaction system on the variations of yield of excited oxygen along flow direction without output-coupling

图 2 无功率输出时, 不同反应系统对单重态氧的产率沿流向变化的影响

图 3 反映了无功率输出时, 水的含量对激发态氧产率变化的影响。由图可知, 当无功率输出时, 产率随流向距离降低很快。因此当水的含量较高时, 实际上将不会有功率输出, 因为在进入光腔前的混合和反应区间里, 大部分的激发态氧已被水所耗尽。但由图 4 可见, 当存在功率输出时, 水对能量的损耗被功率输出所抑制, 尤其在阈值增益不太高时(此时功率提取长度较短), 在水含量较大的情况下仍有相对较高的功率输出。本文功率输出的计算结果与文献[3]理论计算的结果非常接近。

图 5 所示为光腔入口处存在未分解碘分子时,不同阈值增益条件下碘分子沿流向的分解率变化情况。由图可知,功率输出越大,则碘分子的分解越慢。图 6 表明光腔中未分解碘分子的存在对于功率提取是有益的,未分解碘分子浓度增加,输出功率越高。这是因为,碘分子的分解会使小信号增益提高,而小信号增益的增加有利于功率的提取。但碘分子的分解会大量消耗能量,因此碘分子对功率提取的影响很复杂。

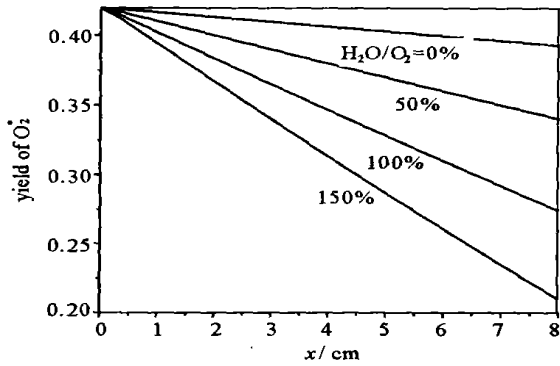


Fig. 3 Effect of water on the change of yield of excited oxygen along flow direction without output-coupling

图 3 无功率输出时,水对激发态氧产率沿流向变化的影响

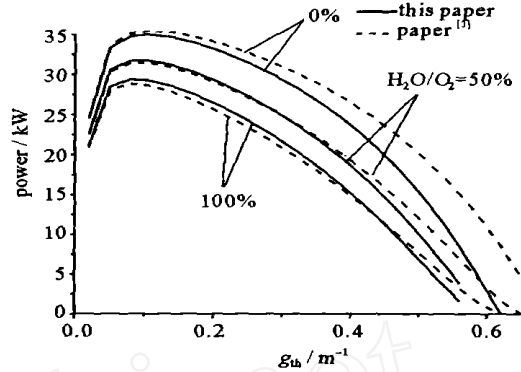


Fig. 4 Effect of water on the output power

图 4 水对功率输出的影响随阈值增益的变化

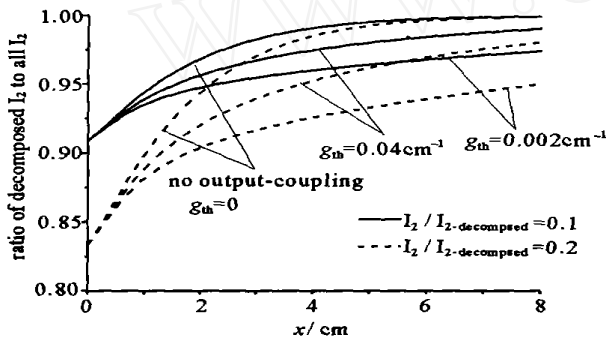


Fig. 5 Variation of the ratio of decomposition of I_2 molecular along flow direction (x) with or without output-coupling

图 5 不同阈值增益下,碘分子的分解率随流向的变化

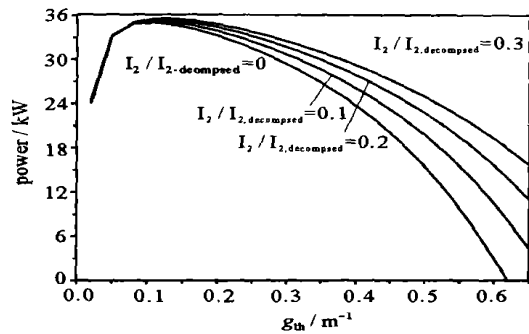


Fig. 6 Effect of I_2 molecular undecomposed on the output power

图 6 未分解碘分子对输出功率的影响

图 7 为温度对功率提取的影响。温度越低,输出功率越高。图中虚线为文献[2]的结果,两模型基本一致,本文模型由于考虑了诸多化学对能量的损耗,输出功率值稍低。另外,随温度降低,效率较高的阈值增益的范围扩大,因此降低温度对提高功率输出很有意义。

图 8 为激发态氧产率对功率输出的影响。产率越高输出功率几乎是按比例地增加。本文结果与文献[2]理论计算所得结果也非常接近。产率对功率的影响是直观而明显的,因此设法增加更多的激发态氧是提高功率输出的一条有效途径。

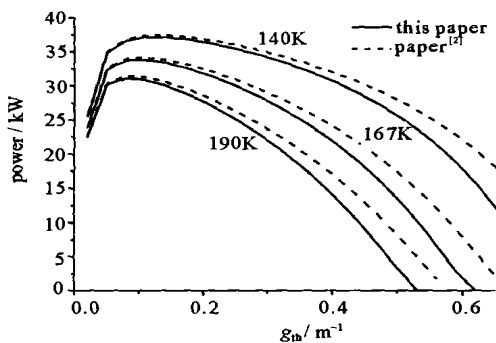


Fig. 7 Effect of temperature on the output power

图 7 温度对功率输出的影响

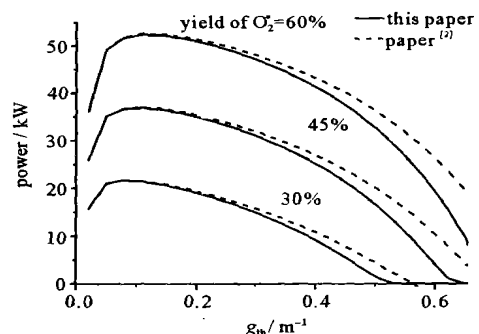


Fig. 8 Effect of yield of excited oxygen on the output power

图 8 激发态氧产率对功率输出的影响

3 总 结

通过分析和计算结果可得出:文献[2]只考虑了泵浦及其逆反应,而本文考虑了诸多其他的淬灭反应,但不同计算结果的比较表明,在碘已分解完毕的条件下考虑其他淬灭反应导致输出功率有一定的差别,但总的来说差别并不显著;另外,降低温度,提高激发态氧产率,增加碘原子的浓度均使输出功率提高,其变化规律均与文献[2]中 RE 模型未考虑诸多淬灭反应的情况类似;水和碘分子的存在对反应过程有着显著的影响,在气流通通过同样长度的条件下,一定量的碘分子的存在使化学反应消耗的能量大大增加;而在功率提取过程中,碘分子对能量损耗的影响大为降低,因为它通过分解提高粒子反转数,从而提高了功率输出。这说明了碘和氧的流量比是一个非常重要的参数的原因:碘流量过多,混合和反应过程中消耗大量的能量;碘流量过低,则将导致粒子数反转和增益过低,这对于能量的提取同样也是很不利。因此,碘分子的存在对于化学非平衡反应和功率提取的影响非常复杂。

参考文献:

- [1] 胡利民,高智. 超声速氧碘化学激光(COIL)的性能分析[J]. 强激光与粒子束, 2002, 14(4): 511—515. (Hu L M, Gao Z, Performance modeling of supersonic chemical oxygen-iodine laser(COIL). *High Power Laser and Particle Beams*, 2002, 14(4): 511—515)
- [2] Hager G D, Helms C A, Truesdell K A, et al. A simplified analytic model for gain saturation and power extraction in the flowing chemical oxygen-iodine laser[J]. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 1996, 32(9): 1525—1536.
- [3] Copeland D A, Warner C and Bauer A H. Simple model for optical extraction from a flowing oxygen-iodine medium using a Fabry-perot resonator[A]. SPIE Optical Resonator[C]. 1990, 1224: 474—499.
- [4] Perram, G P and Hager G D. The standard chemical oxygen $\frac{3}{2}$ iodine laser kinetics package[R]. USAF technical report, AFWL-TR-88-50. 1988.
- [5] Perram G P. Approximate analytic solution for the presence of singlet oxygen[J]. *Int J Chem Kinetics*, 1995, 27(6): 817—28.
- [6] Carrol D. Modeling high-pressure chemical oxygen-iodine lasers[J]. *AIAA Journal*, 1995, 33(8): 1454—1462.
- [7] Paschkewitz J, Shang J, Miller J, et al. An assessment of COIL physical property and chemical kinetic modeling methodologies[A]. the AIAA-31th Plasmadynamics and Laser Conf[C]. Denver: Springs CO, 2000. 1—11.
- [8] Buggeln R C, Shamroth S, Lampson A, et al. Three-dimensional (3-D) Navier-Stokes analysis of the mixing and power extraction in a supersonic chemical oxygen-iodine laser(COIL) with transverse I₂ injection[A]. the AIAA 25th Plasma Dynamics and Laser Conf[C]. Colorado: Springs CO, 1994. 1—18.
- [9] Zagidullin M V, Igoshin V I and Kupriyanov N L. Kinetics of saturation of the active medium of an oxygen-iodine laser[J]. *Sov J Quantum Electron*, 1984, 14: 930—936.
- [10] Gross R W F and Bott J F. Handbook of chemical lasers[M]. New York: John Wiley, 1976.
- [11] 高智. 气流与化学激光中的碰撞和非均匀加宽效应理论分析模型[J]. 物理学报, 1981, 12(12): 1591—1602. (Gao Z. Collisional and inhomogeneous broadening effects in gas-flow and chemical lasers - the theoretical models. *Acta Physica Sinica*, 1981, 12(12): 1591—1602)
- [12] Barmashenko B D and Rosenwaks S. Analysis of the optical extraction efficiency in gas-flow lasers with different types of resonators[J]. *Applied Optics*, 1996, 35(36): 7091—7101.

Effects of chemical kinetics and gain saturation model on the performance of chemical oxygen-iodine laser

HU Li-min, SHEN Yi-qing, GAO zhi

(Laboratory of High Temperature Gas Dynamics, Institute of Mechanics,

Chinese Academy of Sciences, Beijing 100080, China)

Abstract: By combining the rate equation (RE) model with the chemical kinetics model, the effects of gain saturation models and chemical reaction systems on the performance of COIL are discussed in this paper. A premixed one-dimensional model is assumed for the flow field, and a chemical kinetics of 10 components and 21 reactions is adopted. The effects of undecomposed iodine molecular, yield of excited oxygen, content of water and temperature on the power of COIL are analyzed and calculated. The computational results show that much more energy is expended in the processes of mixing and reaction if the flux of iodine is too much, and that much less flux of iodine results in lower gain, which is not benefit to extracting energy.

Key words: Chemical oxygen-iodine laser(COIL); Rate equation (RE) model; Chemical kinetics model