

文章编号: 0258-7025(2005)04-0501-05

NCI($a^1\Delta$) 自猝灭对 NCI($a^1\Delta$)/I 激光 能量提取的影响

唐书凯, 多丽萍, 桑凤亭

(中国科学院大连化学物理研究所短波长化学激光国家重点实验室, 辽宁 大连 116023)

摘要 利用连续流平面型光腔动力学模型对 NCI($a^1\Delta$)/I 激光体系进行了模拟计算, 探讨了温度在 300 K 时 NCI($a^1\Delta$) 自猝灭对 NCI($a^1\Delta$)/I 激光能量提取的影响。计算结果表明, NCI($a^1\Delta$) 自猝灭反应对光腔位置的选取、功率密度沿流动方向的分布和总输出功率都有较大的影响。其中, 光腔位置的可选范围大大缩短, 在较小的初始 HI 粒子数密度和适当的输出镜反射率下总输出功率大幅度降低, 而随着 HI 粒子数密度的增加, NCI($a^1\Delta$) 自猝灭对总输出功率的影响逐渐减小。

关键词 激光物理; NCI($a^1\Delta$) 自猝灭; 数值模拟计算; 功率提取; 全气相碘激光

中图分类号 TN 248.5 **文献标识码** A

Influence of NCI($a^1\Delta$) Self-Annihilation on Energy Extraction of NCI($a^1\Delta$)/I Laser

TANG Shu-kai, DUO Li-ping, SANG Feng-ting

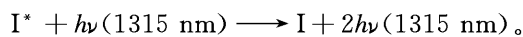
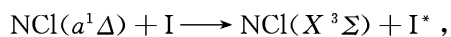
(Dalian Institute of Chemical Physics, The Chinese Academy of Sciences, Dalian, Liaoning 116023, China)

Abstract The influence of NCI($a^1\Delta$) self-annihilation on the energy extraction of NCI($a^1\Delta$)/I laser at 300 K has been simulated using a simplified continuous flow Farby-Perot (F-P) resonator model. The results show that NCI($a^1\Delta$) self-annihilation has an important effect on the location of the cavity resonator, the profile of power density along the flow direction and the total power. The optimal location range of the cavity resonator is dramatically shorten with NCI($a^1\Delta$) self-annihilation. The available power with NCI($a^1\Delta$) self-quenching is much less than that obtained without NCI($a^1\Delta$) self-annihilation at small initial density of HI but has little difference at large initial density of HI.

Key words laser physics; NCI($a^1\Delta$) self-quenching; numerical simulation; power extraction; all-gas phase iodine laser

1 引 言

利用 NCI($a^1\Delta$) 与 I($^2P_{3/2}$) 的近共振传能反应, 可以实现全气相 I 激光^[1~3], 具体反应过程如下:



在该过程中, 储能粒子 NCI($a^1\Delta$) 的产生、传输和能量提取效率直接影响到激光的输出功率和功率在流动方向的分布, 对此, 体系中其他粒子对 NCI($a^1\Delta$) 的产生和损失的影响以及 NCI($a^1\Delta$) 自身的一些损失过程成为动力学研究的重点^[4,5], 特别是随

着研究的深入, NCI($a^1\Delta$) 本身的一些损失过程逐渐受到重视^[5,6]。本文利用连续流平面型光腔动力学模型进行模拟计算, 就 NCI($a^1\Delta$) 自猝灭过程对能量提取的影响进行了探讨。

2 连续流平面型光腔动力学模型

光腔的几何尺寸和分布见图 1。其中, x 方向为流动方向, y 方向为光轴方向, 光腔在 x, y 和 z 轴方向的长度分别记为 L_x, L_y 和 L_z , 平面型腔镜的反射率分别为 R_1 (输出镜) 和 R_2 。光腔在流动方向的

收稿日期: 2004-01-05; 收到修改稿日期: 2004-04-13

作者简介: 唐书凯(1972—), 男, 中国科学院大连化学物理研究所博士研究生, 主要从事短波长化学激光的研究。E-mail: shukaitang@hotmail.com

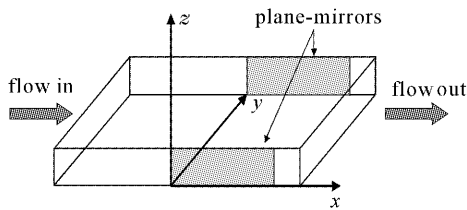


图 1 光腔的几何尺寸和分布

Fig. 1 Schematic diagram of the cavity resonator

截面积固定不变,流体沿 x 方向的线速度恒定,记为 u 。光腔内主要存在化学反应、受激辐射和自发辐射过程。对于连续流 I 激光体系,假设粒子数密度在 y 轴和 z 轴上是均匀分布的,同时忽略光子通量在 y 轴和 z 轴上的分布,则可用如下方程描述光腔内的动力学过程

$$u \frac{\partial N_M(x,t)}{\partial x} = \Sigma X_M(x,t) - \Sigma Y_M(x,t), \quad (1)$$

$$u \frac{\partial N_{I^*}(x,t)}{\partial x} = \Sigma X_{I^*}(x,t) - \Sigma Y_{I^*}(x,t) - A_{21} N_{I^*}(x,t) - \alpha(x,t) f(x,t), \quad (2)$$

$$u \frac{\partial N_I(x,t)}{\partial x} = \Sigma X_I(x,t) - \Sigma Y_I(x,t) + A_{21} N_{I^*}(x,t) + \alpha(x,t) f(x,t), \quad (3)$$

$$\frac{\partial f(x,t)}{\partial t} = c[g(x,t) - g_{th}(x,t)]f(x,t) + b \cdot c \cdot A_{21} \cdot N_{I^*}(x,t), \quad (4)$$

$$g_{th}(x,t) = -\ln R_1(x,t) R_2(x,t) / 2L, \quad (5)$$

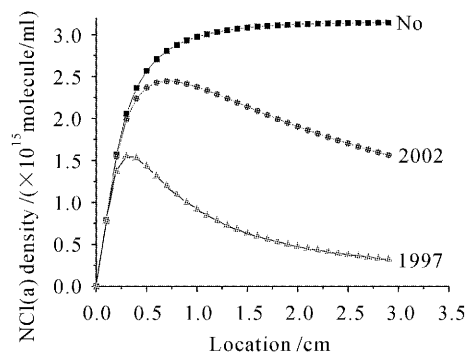
式中 X_M 为 M 粒子的生成速率, Y_M 为 M 粒子的损失速率, f 为沿 y 轴的光子通量, c 为光速, g 为小信号增益系数, g_{th} 为阈值增益系数, A_{21} 为自发辐射系数, N 为粒子数密度, b 为自发辐射光子中参与受激震荡的比例系数, R 为腔镜反射率, L 为增益区长度。

3 结果与讨论

3.1 光腔位置和 HI 加入位置的确定

首先在不加光腔时计算 $NCl(a^1\Delta)$ 的生成情况,以决定光腔的开始位置。反应方程式见附表,其他参数如下:温度 $T = 300$ K,初始粒子数密度 $[Cl] = 1 \times 10^{16}$, $[HN_3] = 2 \times 10^{16}$, $[He] = 1 \times 10^{17}$ (单位: molecule/ml),流体在 x 方向线速度 $u = 100$ m/s,忽略反应气体的混合过程,计算结果见图 2。在图中, No 表示忽略 $NCl(a^1\Delta)$ 的自猝灭反应,2002 和 1997 分别表示 $NCl(a^1\Delta)$ 自猝灭反应常数采用 2002

年^[5]和 1997 年^[7]的测量结果,分别为 7.2×10^{-12} 和 7.0×10^{-13} ml/(molecule · s)。从计算结果看出, $NCl(a^1\Delta)$ 自猝灭反应是造成自身传输损失的主要原因,自猝灭反应常数的大小直接决定了光腔位置和工程实现的难易程度。为了有效利用 $NCl(a^1\Delta)$,光腔位置定在 $NCl(a^1\Delta)$ 出现极大值的位置。据此,光腔开始位置确定如下,不考虑 $NCl(a^1\Delta)$ 自猝灭时为距 HN_3 加入点 2 cm,采用 1997 年的自猝灭反应常数时为 0.3 cm,采用 2002 年的自猝灭反应常数时为 0.7 cm。如果自猝灭反应可以忽略,则光腔的开始位置可以在较大的范围内选择,如果自猝灭常数处于 2002 年测得的数量级,则光腔开始的最佳位置选择范围变小,光腔的最佳开始位置在 HN_3 加入位置后不到 1 cm 的范围内,如果自猝灭常数处于 1997 年测得的数量级,则光腔的最佳开始位置的选择范围变得更小。考察 HI 加入位置的影响发现,由于 HI 量相对很小,而 HI 与 Cl 反应很快,只要在 $NCl(a^1\Delta)$ 达到最大值之前加入 HI,则 HI 加入位置对 $NCl(a^1\Delta)$, I 和 I^* 的分布影响很小,所以在后面的计算中把 HI 与 HN_3 同时加入。

图 2 $NCl(a^1\Delta)$ 沿流动方向的分布Fig. 2 Profile of $NCl(a^1\Delta)$ along the flow direction

3.2 功率密度沿流动方向的分布对比

在 3.1 所得结果的基础上,加上光腔(光腔参数:腔长 $L_x = L_y = 10$ cm, $L_z = 1$ cm,腔镜反射率 $R_1 = 0.999$, $R_2 = 0.9999$),利用上述动力学模型进行数值计算,得到功率密度沿流动方向的分布(见图 3)。从图中可以看到, $NCl(a^1\Delta)$ 自猝灭反应对功率密度沿流动方向的分布影响很大。同时得到的总输出功率分别为 25 W(忽略 $NCl(a^1\Delta)$ 自猝灭),11 W(2002 年的自猝灭常数)和 2 W(1997 年的自猝灭常数)。 $NCl(a^1\Delta)$ 自猝灭反应对能量提取的影响非常大,而目前的 $NCl(a^1\Delta)$ 自猝灭反应常数的测定尚存在分歧, $NCl(a^1\Delta)$ 自猝灭反应与温度的关系未见报

道,这些都给理论上的分析和预测带来了困难。

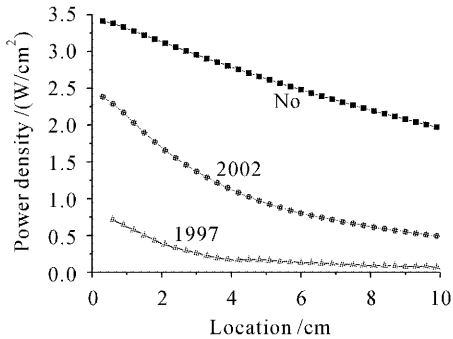


图3 沿流动方向的功率密度

Fig. 3 Profile of power density along the flow direction

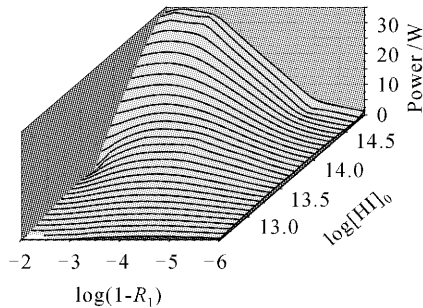


图4 输出功率与 HI 初始粒子数密度和输出镜反射率的关系

Fig. 4 Dependence of power on $[\text{HI}]_0$ and the reflectivity of output mirror

3.3 腔镜反射率和碘量的综合影响

3.3.1 考虑 $\text{NCl}(a^1\Delta)$ 自猝灭

腔镜反射率和碘量是影响激光输出功率的重要参数,为了考察两者对激光输出功率的综合影响,我们采用 2002 年的自猝灭常数,设腔镜反射率 $R_2 = 1$,其他光腔参数和流量参数同前,对不同的输出镜反射率 R_1 和 HI 粒子数密度进行了计算,计算结果见图 4 和图 5。从图 4 可以看到,HI 初始粒子数密度和输出镜反射率对输出功率的影响都很大,当 HI 初始粒子数密度分别为 5×10^{12} , 5×10^{13} 和 5×10^{14} molecule/mL 时,输出功率随 HI 粒子数密度的升高上升很快,而对于固定的 HI 粒子数密度,输出镜的反射率有一最佳范围。尽管从图 4 的结果得到 HI 的初始粒子数密度较大时有利于输出功率的增大,但从图 5 可以看到,随着 HI 初始粒子数密度的升高,输出功率密度沿流动方向下降的速度加快,激光输出集中到光腔的开始部分。

3.3.2 不考虑 $\text{NCl}(a^1\Delta)$ 自猝灭

假设没有 $\text{NCl}(a^1\Delta)$ 的自猝灭,其他条件同 3.

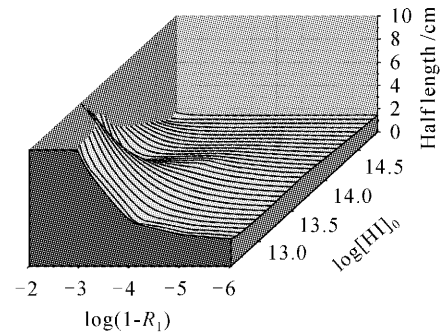


图5 输出功率密度下降一半的距离与 HI 初始粒子数密度和耦合输出镜反射率的关系

Fig. 5 Dependence of half length (distance from the maximum power density to half of the maximum power density) on $[\text{HI}]_0$ and the reflectivity of output mirror

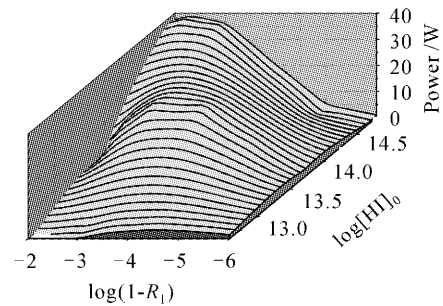


图6 输出功率及 HI 初始粒子数密度与输出镜反射率的关系(不考虑 $\text{NCl}(a^1\Delta)$ 自猝灭)

Fig. 6 Dependence of power on $[\text{HI}]_0$ and the reflectivity of output mirror without $\text{NCl}(a^1\Delta)$ self-annihilation

3.1, 计算结果见图 6。与考虑自猝灭时的计算结果比较,输出功率在 HI 加入量较小时差异较大,无 $\text{NCl}(a^1\Delta)$ 自猝灭与有自猝灭时的输出功率之比最高可达 2.3,而随着 HI 加入量的增加, $\text{NCl}(a^1\Delta)$ 自猝灭的影响逐渐减小,当 HI 加入量达到初始 $\text{NCl}(a^1\Delta)$ 的 10% 时,两者的输出功率已经相差不多。但是,通常来讲,碘量的增加加快了光腔的能量提取速度,会使激光输出更加集中到光腔的开始部分,可能对某些具体应用带来影响。

与 AGIL I^[3] 和 AGIL II^[8] 的实验结果相比,上述计算在参数的选择上与 AGIL I 和 AGIL II 的实验条件是可比的,所得的输出功率结果和其他规律性的结果都吻合得较好。

4 结论

利用连续流平面型光腔动力学模型的计算表

明,从目前的动力学研究结果来看,在温度为 300 K 时,NCl($a^1\Delta$)自猝灭反应严重影响了储能粒子 NCl($a^1\Delta$)在流动方向的分布,如果没有 NCl($a^1\Delta$)自猝灭反应存在,则 NCl($a^1\Delta$)在流动传输过程中的损失比较小,可以在较大范围内选取光腔的开始位置,而采用 2002 年和 1997 年的 NCl($a^1\Delta$)自猝灭反应常数,不仅 NCl($a^1\Delta$)的生成效率降低,而且 NCl($a^1\Delta$)粒子数密度在达到最大值后下降很快,这无疑给光腔位置的选取增加了难度。NCl($a^1\Delta$)自猝灭反应对激光输出功率密度沿流动方向的分布有重要影响,同时使总输出功率降低了一倍。由于目前没有 NCl($a^1\Delta$)自猝灭反应常数与温度相关性的数据,无法评估高温时 NCl($a^1\Delta$)自猝灭反应的影响。

参 考 文 献

- 1 T. T. Yang, R. D. Bower. $I(^2P_{1/2})$ produced from the energy transfer from NCl($a^1\Delta$) to $I(^2P_{3/2})$ [C]. *SPIE*, 1990, **1225**: 430~438
- 2 Liping Duo, Shukai Tang, Jian Li *et al.*. Experimental study on the system of Cl/Cl₂/He/HN₃/I₂ [J]. *Chin. Opt. Lett.*, 2003, **1**(2):88~90
- 3 Cao Bailing, Wu Chengjiu, Wei Heli *et al.*. Atmospheric attenuation of the iodine lasers [J]. *Acta Optica Sinica*, 2003, **23**(4): 496~500
曹百灵, 邬成就, 魏合理 等. 碘激光的大气衰减特性 [J]. *光学学报*, 2003, **23**(4): 496~500
- 4 T. L. Henshaw, T. J. Madden, G. C. Manke II *et al.*. Recent experimental results in the development of all gas phase iodine laser [C]. 31st AIAA Plasmadynamics and Lasers Conference, AIAA 2000~2424, 19~22 June 2000/Denver, CO.
- 5 K. B. Hewett, G. C. Manke II, D. W. Setser *et al.*. Quenching rate constants of NCl($a^1\Delta$) at room temperature [J]. *J. Phys. Chem. A*, 2000, **104**:539~551
- 6 A. V. Komissarov, G. C. Manke II, S. J. Davis *et al.*. Rate constants for quenching and self-annihilation of NCl($a^1\Delta$) [J]. *J. Phys. Chem. A*, 2002, **106**:8427~8434
- 7 G. S. Tschumper, M. C. Heaven, K. Morokuma. An ab initio excursion on the lowest 18 electronic surfaces of the NCl+NCI system: some insight into the long-range self-quenching pathways of the first excited state of NCl [J]. *J. Phys. Chem. A*, 2002, **106**:8453~8460
- 8 T. L. Henshaw, S. D. Herrera, G. W. Haggquist *et al.*. Kinetics of NCl($a^1\Delta$) via photodissociation of ClN₃ [J]. *J. Phys. Chem. A*, 1997, **101**:4048~4056
- 9 G. C. Manke II, C. B. Cooper, S. C. Dass *et al.*. A multiwatt all gas-phase iodine laser (AGIL) [J]. *IEEE J. Quantum Electron.*, 2003, **39**(8):995~1002
- 10 T. J. Madden, T. L. Henshaw, G. C. Manke II *et al.*. A model for the NCl($a^1\Delta$)-I transfer chemical laser [C]. 31st AIAA Plasmadynamics and Lasers Conference, AIAA 2000~2423, 19~22 June 2000/Denver, CO.
- 11 Duo Liping, Li Guofu, Li Jian *et al.*. Review and possibility of a chemical iodine laser pumped by NCl($a^1\Delta$) [J]. *Chinese J. Quantum Electron.*, 2001, **18**(5):385~390
多丽萍, 李国富, 李 健 等. NCl($a^1\Delta$)泵浦碘原子化学激光综述及可行性分析 [J]. *量子电子学报*, 2001, **18**(5):385~390

附表 反应方程式

反应	速率常数	文献
$\text{Cl} + \text{HI} \longrightarrow \text{HCl} + \text{I}$	$k_1 = 9.6 \times 10^{-11}$	[9]
$\text{Cl} + \text{HN}_3 \longrightarrow \text{HCl} + \text{N}_3$	$k_2 = 1.34 \times 10^{-12}$	[9]
$\text{Cl} + \text{N}_3 \longrightarrow \text{NCl}(X^3\Sigma) + \text{N}_2$	$k_3 = 0.5 \times 10^{-11}$	[9]
$\text{Cl} + \text{N}_3 \longrightarrow \text{Cl}(a^1\Delta) + \text{N}_2$	$k_4 = 1.5 \times 10^{-11}$	[9]
$\text{Cl} + \text{N}_3 \longrightarrow \text{NCl}(b^1\Sigma) + \text{N}_2$	$k_5 = 4.0 \times 10^{-13}$	[9]
$\text{NCl}(a^1\Delta) + \text{I} \longrightarrow \text{NCl}(X^3\Sigma) + \text{I}^*$	$k_6 = 1.46 \times 10^{-11}$	[9]
$\text{NCl}(X^3\Sigma) + \text{I}^* \longrightarrow \text{NCl}(a^1\Delta) + \text{I}$	$k_7 = 1.0 \times 10^{-12}$	[1]
$\text{NCl}(a^1\Delta) + \text{I} \longrightarrow \text{NCl}(X^3\Sigma) + \text{I}$	$k_8 = 6.33 \times 10^{-12}$	[1]
$\text{NCl}(a^1\Delta) \longrightarrow \text{NCl}(X^3\Sigma) + h\nu(1077 \text{ nm})$	$k_9 = 0.5$	[9]
$\text{I}^* \longrightarrow \text{I} + h\nu(1315 \text{ nm})$	$k_{10} = 7.8$	[10]
$2\text{NCl}(a^1\Delta) \longrightarrow \text{products}$	$k_{11} = 7.0 \times 10^{-13}$	[5]
$\text{NCl}(a^1\Delta) + \text{Cl} \longrightarrow \text{NCl}(X^3\Sigma) + \text{Cl}$	$k_{12} = 1.0 \times 10^{-12}$	[9]
$\text{NCl}(a^1\Delta) + \text{Cl}_2 \longrightarrow \text{NCl}(X^3\Sigma) + \text{Cl}_2$	$k_{13} = 4.0 \times 10^{-13}$	[9]
$\text{NCl}(a^1\Delta) + \text{HCl} \longrightarrow \text{NCl}(X^3\Sigma) + \text{HCl}$	$k_{14} = 1.3 \times 10^{-14}$	[9]
$\text{NCl}(a^1\Delta) + \text{HI} \longrightarrow \text{NCl}(X^3\Sigma) + \text{HI}$	$k_{15} = 6.9 \times 10^{-11}$	[9]

反应	速率常数	文献
$\text{NCl}(a^1\Delta) + \text{He} \longrightarrow \text{NCl}(X^3\Sigma) + \text{He}$	$k_{16} = 8.0 \times 10^{-21}$	[9]
$\text{NCl}(b^1\Sigma) + \text{Cl} \longrightarrow \text{NCl}(a^1\Delta) + \text{Cl}$	$k_{17} = 3.6 \times 10^{-14}$	[9]
$\text{NCl}(b^1\Sigma) + \text{Cl}_2 \longrightarrow \text{NCl}(a^1\Delta) + \text{Cl}_2$	$k_{18} = 1.8 \times 10^{-12}$	[9]
$\text{NCl}(b^1\Sigma) + \text{HCl} \longrightarrow \text{NCl}(a^1\Delta) + \text{HCl}$	$k_{19} = 3.6 \times 10^{-14}$	[9]
$\text{I}^* + \text{Cl} \longrightarrow \text{I} + \text{Cl}$	$k_{20} = 1.5 \times 10^{-11}$	[9]
$\text{I}^* + \text{Cl}_2 \longrightarrow \text{I} + \text{Cl}_2$	$k_{21} = 2.0 \times 10^{-14}$	[9]
$\text{I}^* + \text{I}_2 \longrightarrow \text{I} + \text{I}_2$	$k_{22} = 3.6 \times 10^{-11}$	[9]
$\text{I}^* + \text{HCl} \longrightarrow \text{I} + \text{HCl}$	$k_{23} = 1.4 \times 10^{-14}$	[9]
$\text{I}^* + \text{He} \longrightarrow \text{I} + \text{He}$	$k_{24} = 5.0 \times 10^{-18}$	[9]
$2\text{I} + \text{He} \longrightarrow \text{I}_2 + \text{He}$	$k_{25} = 3.74 \times 10^{-33}$	[9]
$2\text{I} + \text{I}_2 \longrightarrow \text{I}_2 + \text{I}_2$	$k_{26} = 4.10 \times 10^{-30}$	[9]
$2\text{I} + \text{HI} \longrightarrow \text{I}_2 + \text{HI}$	$k_{27} = 8.0 \times 10^{-32}$	[9]
$3\text{I} \longrightarrow \text{I}_2 + \text{I}$	$k_{28} = 5.86 \times 10^{-30}$	[9]
$\text{Cl} + \text{I} + \text{M} \longrightarrow \text{ICl} + \text{M}$	$k_{29} = 6.3 \times 10^{-32}$	[9]
$2\text{Cl} + \text{He} \longrightarrow \text{Cl}_2 + \text{He}$	$k_{30} = 8.37 \times 10^{-35}$	[9]
$2\text{Cl} + \text{Cl}_2 \longrightarrow \text{Cl}_2 + \text{Cl}_2$	$k_{31} = 4.19 \times 10^{-34}$	[9]
$3\text{Cl} \longrightarrow \text{Cl}_2 + \text{Cl}$	$k_{32} = 8.37 \times 10^{-34}$	[9]
$2\text{N}_3 \longrightarrow 3\text{N}_2$	$k_{33} = 3.0 \times 10^{-12}$	[9]
$2\text{NCl}(X^3\Sigma) \longrightarrow \text{N}_2 + \text{Cl} + \text{Cl}$	$k_{34} = 8.1 \times 10^{-12}$	[9]

注: 反应常数 k 的单位, 单分子反应: s^{-1} , 双分子反应: $\text{cm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$, 三分子反应: $\text{cm}^6 \cdot \text{s}^{-1}$ 。