

文章编号: 0258-7025(2009)09-2309-06

NCl(α)/I 全气相碘激光与氧碘化学激光能量提取的分析比较

唐书凯 多丽萍 于海军 汪健 桑凤亭 金玉奇

(中国科学院大连化学物理研究所, 中国科学院化学激光重点实验室, 辽宁 大连 116023)

摘要 利用连续流光腔动力学模型, 对氧碘化学激光(COIL)和基于 NCl(α)-I 传能的全气相碘激光(AGIL)的能量提取进行了分析和公式推导, 得到了连续流光腔的光子通量解析表达式以及氧碘化学激光光子通量沿流动方向的分布和输出功率的简化计算公式。AGIL 的体系较为复杂, 不能得到光子通量沿流动方向分布和输出功率的简化计算公式。从能量提取和体积重量效率角度, 对氧碘化学激光和基于 NCl(α)-I 传能的全气相碘激光进行了对比评价。

关键词 激光器; 全气相碘激光; 氧碘化学激光; 连续流光腔动力学模型; 能量提取; 对比评价

中图分类号 TN248.5 文献标识码 A doi: 10.3788/CJL20093609.2309

Analysis and Comparison of Energy Extraction for NCl(α)/I All Gas-Phase Iodine Laser and Chemical Oxygen Iodine Laser

Tang Shukai Duo Liping Yu Haijun Wang Jian Sang Fengting Jin Yuqi

(Key Laboratory of Chemical Lasers, Dalian Institute of Chemical Physics, Chinese Academy of Sciences, Dalian, Liaoning 116023 China)

Abstract The analysis formula of cavity photon flux for chemical oxygen iodine laser(COIL) and NCl(α)-I all gas-phase iodine laser(AGIL) is obtained using the chemical dynamics model of continuous wave cavity. The profile of cavity photon flux along the flow direction and the total output power has a simplified analysis formula for COIL but no for NCl(α)-I AGIL due to its complexity. Comparison and estimation for COIL and NCl(α)-I AGIL have been finished as viewed from the energy extraction and volume/weight efficiency.

Key words lasers; all gas-phase iodine laser; chemical oxygen iodine laser; chemical dynamics model of continuous wave cavity; energy extraction; comparison and estimation

1 引言

碘激光始于 1964 年 Casper 和 Pimentel 演示的第一个光解烷基碘化合物碘激光^[1,2]。因为碘激光的 1315 nm 波长具有良好的光纤传输特性, 从而具有广泛的应用前景, 引起了人们极大的关注。1977 年, McDermott 等^[3]利用氯气与过氧化氢的碱溶液发生反应产生储能粒子 $O_2(a)$ 的方法, 首次实现了基于 $O_2(a)$ -I 传能的化学氧碘激光 (Chemical oxygen iodine laser, COIL)。随着 COIL 的发展, 人们发现了 COIL 的不足之处, 主要是在 COIL 中利用气-液两相反应的单重态氧发生器及其附加设施占了整个系统的大部分体积和重量, 不利于体积效

率和重量效率的提高, 降低了 COIL 的机动性能, 这种特点随着功率的不断提高显得更加突出。

为了克服 COIL 的气-液两相反应所带来的问题, 很有必要寻找一种全气相化学产生的、高粒子数密度的传能粒子。NCl(α) 与 I 存在近共振传能的发现, 激发了利用 NCl(α) 和 NF(α) 替代 $O_2(a)$ 实现全气相碘激光的研究。在随后的十几年里, 基于 NCl(α)-I 传能的全气相碘激光经历了设想、实现和初步放大的发展历程。Yang 等^[4]在 1990 年发现 NCl(α)-I 存在近共振传能; Ray 等^[5]在 1995 年实现了第一个 NCl(α) 抽运的脉冲碘激光; Herbelin 等^[6]在 1999 年测得亚音速连续流 NCl(α)-I 体系的小信号增益, 最大小信

收稿日期: 2008-09-05; 收到修改稿日期: 2008-09-26

基金项目: 国家 863-802 专题(2007AA802305)资助课题。

作者简介: 唐书凯(1972—), 男, 博士, 副研究员, 主要从事化学激光等方面的研究。E-mail: shukaitang@hotmail.com

号增益为 $0.036\% \text{ cm}^{-1}$; Henshaw 等^[7]在 2000 年第一次实现了连续流全气相碘激光的出光演示, 出光功率为 180 mW, 作者称之为 AGIL I; Manke II 等^[8,9]在 AGIL I 的基础上, 实现了功率的初步放大, 功率达到 31 W, 称之为 AGIL II。在 2005 年, 燃烧驱动的纯化学全气相碘激光研究获得了正增益信号^[10]。近两年没有大的进展报告。

本研究小组在 2000 年开始, 对国际的这一研究方向进行了跟踪探索研究^[11~13]。本文利用连续流光腔动力学模型, 对 COIL 和 AGIL 进行了分析比较, 同时对 AGIL 的总体优势和当前方案所遇到的问题进行了简要介绍。

2 连续流光腔动力学模型

光腔的几何尺寸和分布如图 1 所示。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 , 腔镜的反射率分别为 r_1 (输出镜) 和 r_2 (反射镜)。流体的线速度恒定, 记为 u 。

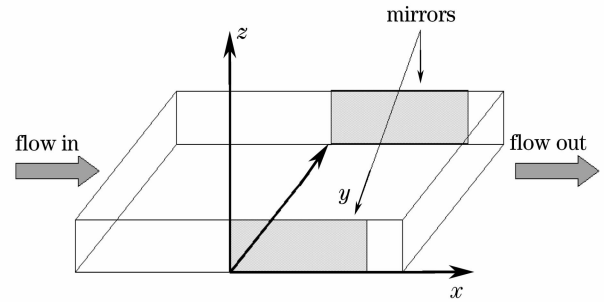


图 1 光腔的几何尺寸和分布

Fig. 1 Schematic diagram of oscillator cavity

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, 则可用方程

$$u \frac{dN_M(x,t)}{dx} = \sum X_M(x,t) - \sum Y_M(x,t), \quad (1)$$

$$u \frac{dN_{1^*}(x,t)}{dx} = \sum X_{1^*}(x,t) - \sum Y_{1^*}(x,t) - A_{21}N_{1^*}(x,t) - \alpha(x,t)f(x,t), \quad (2)$$

$$u \frac{dN_1(x,t)}{dx} = \sum X_1(x,t) - \sum Y_1(x,t) + A_{21}N_{1^*}(x,t) + \alpha(x,t)f(x,t), \quad (3)$$

$$\frac{df(x,t)}{dt} = c[\alpha(x,t) - \alpha_{th}(x,t)]f(x,t) + b \cdot c \cdot A_{21} \cdot N_{1^*}(x,t), \quad (4)$$

$$\alpha_{th}(x,t) = -\ln r_1(x,t)r_2(x,t)/2L \quad (5)$$

来描述光腔内的动力学过程, 式中 X_M 为 M 粒子的生成速率, Y_M 为 M 粒子的消失速率, f 为光子通量, c 为光速, α 为增益系数, α_{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振荡的比例系数。

当体系达到稳定状态时, 在流动方向上的粒子数密度分布和光通量分布不再随时间变化, 即

$$\frac{dN_M(x,t)}{dt} = 0, \quad (6)$$

$$\frac{df(x,t)}{dt} = c[\alpha(x,t) - \alpha_{th}(x,t)]f(x,t) + b \cdot c \cdot A_{21} \cdot N_{1^*}(x,t) = 0. \quad (7)$$

在产生受激振荡时, 自发辐射对光子通量的贡献可以忽略不计, 得到 $\alpha(x,t) = \alpha_{th}(x,t)$, 即

$$\sigma[N_{1^*}(x,t) - 0.5N_1(x,t)] = \alpha_{th}(x,t), \quad (8)$$

式中 $\sigma = \frac{7}{12}\sigma_0 = \frac{7}{12} \frac{\lambda^3 A_{21}}{8\pi} \sqrt{\frac{m}{2\pi kT}}$.

假设腔镜的反射率是均匀的, 并且不随时间变化, 对 x 求导得

$$\frac{dN_{1^*}(x,t)}{dx} = \frac{1}{2} \frac{dN_1(x,t)}{dx}, \quad (9)$$

结合(2)和(3)式, 得

$$f(x) = \frac{1}{3\alpha_{th}} \left\{ 2 \times \left[\sum X_{1^*}(x) - \sum Y_{1^*}(x) - A_{21}N_{1^*}(x) \right] - \left[\sum X_1(x) - \sum Y_1(x) + A_{21}N_{1^*}(x) \right] \right\}. \quad (10)$$

3 COIL 分析

3.1 公式推导

在 COIL 中,表 1 列出了碘原子相关的反应方程,可以得出(10)式中相关项的具体表达式

$$\begin{aligned} \sum X_1^* - \sum Y_1^* - A_{21} N_1^* &= k_4 N_{O_2(a)} N_1 - [k_5 N_{O_2(x)} + k_6 N_{I_2} + k_7 N_{H_2O_2} + k_8 N_{H_2O} + \\ &(k_9 + k_{10}) N_{O_2(a)} + k_{11} N_1 + k_{12} N_{Cl_2} + k_{13} N_{ICl} + k_{14} N_{He} + k_{15} N_{O_2(x)} + k_{16} N_1 N_{I_2} + A_{21}] N_1^*, \\ \sum X_1 - \sum Y_1 + A_{21} N_1^* &= 2k_2 N I_2^* N_{O_2(x)} + 2k_3 N_{I_2} N_{O_2(b)} + [k_5 N_{O_2(x)} + k_6 N_{I_2} + k_7 N_{H_2O_2} + \\ &k_8 N_{H_2O} + (k_9 + k_{10}) N_{O_2(a)} + k_{11} N_1 + k_{12} N_{Cl_2} + k_{13} N_{ICl} + k_{14} N_{He} + k_{15} N_{O_2(x)} + A_{21}] N_1^* - \\ &(k_4 N_{O_2(a)} + k_{16} N_{I_2} N_1^*) N_1 - 2 \times (k_{18} N_{I_2} + k_{19} N_{He} + k_{20} N_{O_2(x)}) N_1^2, \end{aligned}$$

代入(10)式,得

$$\begin{aligned} f(x) &= \frac{1}{\alpha_{th}} \left\{ k_4 N_{O_2(a)} N_1 + \frac{2}{3} \sum_{i=18}^{20} k_i N_i N_1^2 - \left(\sum_{i=5}^{15} k_i N_i + A_{21} \right) N_1^* - \frac{1}{3} k_{16} N_{I_2} N_1^* N_1 - \right. \\ &\left. \frac{2}{3} [k_2 N I_2^* N_{O_2(x)} + k_3 N_{I_2} N_{O_2(b)}] \right\} \end{aligned} \quad (11)$$

表 1 COIL 中碘原子的相关反应方程式

Table 1 Reactions related with atomic iodine in COIL

Reaction equation	Reaction constant	Reaction equation	Reaction constant
$I_2 + O_2(a) = I_2^* + O_2(x)$	$k_1 = 7.0 \times 10^{-15}$	$I^* + I = I + I$	$k_{11} = 1.6 \times 10^{-14}$
$I_2^* + O_2(a) = I + I + O_2(x)$	$k_2 = 3.0 \times 10^{-10}$	$I^* + Cl_2 = ICl + Cl$	$k_{12} = 5.5 \times 10^{-15}$
$I_2 + O_2(b) = I + I + O_2(x)$	$k_3 = 4.0 \times 10^{-12}$	$I^* + ICl = I_2(x) + Cl$	$k_{13} = 1.5 \times 10^{-11}$
$I + O_2(a) = I^* + O_2(x)$	$k_4 = 7.8 \times 10^{-11}$	$I^* + He = I + He$	$k_{14} = 5.0 \times 10^{-18}$
$I^* + O_2(x) = I + O_2(a)$	$k_5 = 2.7 \times 10^{-11}$	$I^* + O_2(x) = I + O_2(x)$	$k_{15} = 3.5 \times 10^{-16}$
$I^* + I_2(x) = I_2^* + I$	$k_6 = 3.8 \times 10^{-11}$	$I^* + I + I_2(x) = I_2(b) + I_2(x)$	$k_{16} = 3.6 \times 10^{-30}$
$I^* + H_2O_2 = I + H_2O_2$	$k_7 = 2.5 \times 10^{-11}$	$I^* = I + h\nu(1315 \text{ nm})$	$k_{17} = 7.8$
$I^* + H_2O = I + H_2O$	$k_8 = 2.0 \times 10^{-12}$	$I + I + I_2(x) = I_2(x) + I_2(x)$	$k_{18} = 3.6 \times 10^{-30}$
$I^* + O_2(a) = I + O_2(b)$	$k_9 = 1.1 \times 10^{-13}$	$I + I + He = I_2(x) + He$	$k_{19} = 3.6 \times 10^{-33}$
$I^* + O_2(a) = I + O_2(a)$	$k_{10} = 1.1 \times 10^{-13}$	$I + I + O_2(x) = I_2(x) + O_2(x)$	$k_{20} = 3.7 \times 10^{-32}$

由于光腔内的 I_2 , H_2O , H_2O_2 , Cl_2 , ICl 的量相对 $O_2(a)$ 和 $O_2(x)$ 很小,并且沿流动方向的变化不大,所以 $f(x)$ 的大小和在 x 方向上的分布主要由抽运反应 4 及其逆反应 5 控制。(11)式约化为

$$\begin{aligned} f(x) &\approx \frac{1}{\alpha_{th}} [k_4 N_{O_2(a)}(x) N_1(x) - \\ &k_5 N_{O_2(x)}(x) N_1^*(x)], \end{aligned} \quad (12)$$

由于 I_2 用量少,并且绝大部分已经转化为 I 原子,所以通过反应 18~20 而损失的 I 原子可以忽略,可以认为 I 原子总量($I + I^*$, 用 $N_{I-total}$ 表示)在有限长光腔内的变化是可以忽略的,即 $N_1 + N_1^* = \text{常数}$,根据(8)式可以得出 N_1 与 N_1^* 为常数,具体数值为

$$N_1 = \frac{2}{3} \left(N_{I-total} - \frac{\alpha_{th}}{\sigma} \right), \quad (13a)$$

$$N_1^* = \frac{1}{3} \left(N_{I-total} + \frac{2\alpha_{th}}{\sigma} \right). \quad (13b)$$

同时, $N_{O_2(x)}$, $N_{O_2(a)}$ 和 $N_{O_2(b)}$ 满足

$$N_{O_2(x)} + N_{O_2(a)} + N_{O_2(b)} \approx$$

$$N_{O_2(x)} + N_{O_2(a)} = N_{O_2-total} = C,$$

式中 C 为常数。

根据表 2 列出的有关 $O_2(a)$ 的反应,忽略贡献不大的反应,可以得到 $N_{O_2(a)}(x)$ 的近似表达式并代入(11)式,化简得到

$$f(x) \approx f(0) \exp\left(-\frac{\beta}{u} x\right), \quad (14)$$

式中,

$$\begin{aligned} f(0) &= \\ &\frac{1}{\alpha_{th}} [k_4 N_{O_2(a)}(0) N_1(0) - k_5 N_{O_2(x)}(0) N_1^*(0)], \end{aligned}$$

$$\beta = k_4 N_1 + k_5 N_1^*.$$

输出功率

$$\begin{aligned} P &= \int_0^{L_z} \int_0^{L_x} h\nu(1-r_1) f(x) dx dz = \\ &\frac{h\nu(1-r_1)L_z u f(0)}{\beta} \left[1 - \exp\left(-\frac{\beta L_x}{u}\right) \right]. \end{aligned} \quad (15)$$

表 2 COIL 中 $O_2(a)$ 相关反应方程式
Table 2 Reactions related with $O_2(a)$ in COIL

Reaction equation	Reaction constant	Reaction equation	Reaction constant
$I^* + O_2(x) = O_2(a) + I$	$k = 2.7 \times 10^{-11}$	$O_2(a) + H_2O = O_2(x) + H_2O$	$k = 4.0 \times 10^{-18}$
$O_2(b) + O_2(x) = O_2(a) + O_2(x)$	$k = 3.9 \times 10^{-17}$	$O_2(a) + Cl_2 = O_2(x) + Cl_2$	$k = 6.0 \times 10^{-21}$
$O_2(b) + H_2O = O_2(a) + H_2O$	$k = 6.7 \times 10^{-12}$	$O_2(a) + He = O_2(x) + He$	$k = 8.0 \times 10^{-15}$
$O_2(b) + Cl_2 = O_2(a) + Cl_2$	$k = 2.0 \times 10^{-15}$	$O_2(a) + I = I + O_2(x)$	$k = 1.0 \times 10^{-15}$
$O_2(b) + H_2O_2 = O_2(a) + H_2O_2$	$k = 3.3 \times 10^{-13}$	$O_2(a) + I_2(x) = I_2^* + O_2(x)$	$k = 7.0 \times 10^{-10}$
$O_2(b) + He = O_2(a) + He$	$k = 1.0 \times 10^{-17}$	$O_2(a) + I_2^* = I + I + O_2(x)$	$k = 3.0 \times 10^{-11}$
$O_2(a) + O_2(a) = O_2(b) + O_2(x)$	$k = 2.7 \times 10^{-17}$	$O_2(a) + I_2 = I + I + O_2(x)$	$k = 1.0 \times 10^{-11}$
$O_2(a) + O_2(a) = O_2(x) + O_2(x)$	$k = 1.7 \times 10^{-17}$	$O_2(a) + I_2 = I_2(b) + O_2(x)$	$k = 8.0 \times 10^{-13}$
$O_2(a) + I = I^* + O_2(x)$	$k = 7.8 \times 10^{-11}$	$O_2(a) + I^* = I + O_2(b)$	$k = 1.1 \times 10^{-18}$
$O_2(a) + O_2(x) = O_2(x) + O_2(x)$	$k = 1.6 \times 10^{-18}$		

从上面的分析和推导可以看到,在要求精度不高的情况下(误差 $<10\%$),忽略次要反应后,可以得到各个反应对光子通量的影响表达式(11)、光子通量随流动方向的表达式(14)和功率的表达式(15),为讨论化学反应和光腔参数对 COIL 激光提取的影响提供了方便。

3.2 分析与评价

在 COIL 中,通过对粒子数密度和反应常数的分析、比较和推导,发现在光腔内的动力学过程受抽

运反应、受激辐射和抽运反应的逆反应控制,其他反应对出光的影响较小并可通过提高实验技术使其降到最小。尽管快速的抽运逆反应限制了 $O_2(a)$ 的利用效率, $O_2(a)$ 的大部分能量仍然可以通过光腔提取并转化为激光输出。

4 AGIL 分析

4.1 公式推导

相关反应式列于表 3,对(10)式具体化,得到

$$f(x) = \frac{1}{\alpha_{th}} \left[k_{10} N_{NCl(a)} N_1 - (k_{12} N_{NCl(x)} + \sum_{i=40}^{53} k_i N_i N_{I^*} + A_{21}) N_{I^*} + \frac{1}{3} k_{56} N_{Cl} N_M N_1 + \frac{2}{3} \sum_{60}^{63} k_i N_1 N_1^2 \right], \quad (16)$$

表 3 AGIL 反应方程式 ($T=300$ K)
Table 3 Reactions of AGIL ($T=300$ K)

Reaction equation	Reaction constant	Reaction equation	Reaction constant
$F + Cl_2 = ClF + Cl$	$k_1 = 1.2 \times 10^{-11}$	$NCl(b) + HCl = NCl(a) + HCl$	$k_{33} = 3.6 \times 10^{-14}$
$F + DCl = DF + Cl$	$k_2 = 8.7 \times 10^{-11}$	$NCl(b) + DCl = NCl(a) + DCl$	$k_{34} = 3.6 \times 10^{-14}$
$Cl + HI = HCl + I$	$k_3 = 9.6 \times 10^{-11}$	$NCl(b) + ICl = NCl(a) + ICl$	$k_{35} = 7.2 \times 10^{-12}$
$Cl + I_2 = ICl + I$	$k_4 = 2.0 \times 10^{-10}$	$NCl(b) + IF = NCl(a) + IF$	$k_{36} = 1.1 \times 10^{-11}$
$Cl + ICl = Cl_2 + I$	$k_5 = 8.0 \times 10^{-12}$	$NCl(b) + HF = NCl(a) + HF$	$k_{37} = 3.6 \times 10^{-14}$
$Cl + HN_3 = HCl + N_3$	$k_6 = 1.34 \times 10^{-12}$	$NCl(b) + DF = NCl(a) + DF$	$k_{38} = 3.6 \times 10^{-14}$
$Cl + N_3 = NCl(x) + N_2$	$k_7 = 0.5 \times 10^{-11}$	$NCl(b) + ClF = NCl(a) + ClF$	$k_{39} = 1.0 \times 10^{-12}$
$Cl + N_3 = NCl(a) + N_2$	$k_8 = 1.5 \times 10^{-11}$	$I^* + Cl = I + Cl$	$k_{40} = 1.5 \times 10^{-11}$
$Cl + N_3 = NCl(b) + N_2$	$k_9 = 4.0 \times 10^{-13}$	$I^* + Cl_2 = I + Cl_2$	$k_{41} = 2.0 \times 10^{-14}$
$NCl(a) + I = NCl(x) + I^*$	$k_{10} = 1.46 \times 10^{-11}$	$I^* + F_2 = I + F_2$	$k_{42} = 5.0 \times 10^{-14}$
$NCl(a) + I = NCl(x) + I$	$k_{11} = 6.33 \times 10^{-12}$	$I^* + I_2 = I + I_2$	$k_{43} = 3.6 \times 10^{-11}$
$NCl(x) + I^* = NCl(a) + I$	$k_{12} = 1.0 \times 10^{-12}$	$I^* + HCl = I + HCl$	$k_{44} = 1.4 \times 10^{-14}$
$NCl(a) = NCl(x) + hv(1077)$	$k_{13} = 0.5$	$I^* + ClF = I + ClF$	$k_{45} = 4.3 \times 10^{-15}$
$I^* = I + hv(1315)$	$k_{14} = 7.8$	$I^* + DCl = I + DCl$	$k_{46} = 1.1 \times 10^{-13}$
$N_3 + N_3 = N_2 + N_2 + N_2$	$k_{15} = 3.0 \times 10^{-12}$	$I^* + HF(0) = I + HF(2)$	$k_{47} = 1.1 \times 10^{-12}$
$NCl(x) + NCl(x) = N_2 + Cl + Cl$	$k_{16} = 8.1 \times 10^{-12}$	$I^* + HF(0) = I + HF(1)$	$k_{48} = 1.5 \times 10^{-13}$
$NCl(a) + NCl(a) = \text{products}$	$k_{17} = 7.2 \times 10^{-12}$	$I^* + HF(0) = I + HF(0)$	$k_{49} = 1.8 \times 10^{-12}$
$NCl(a) + Cl = NCl(x) + Cl$	$k_{18} = 1.0 \times 10^{-12}$	$I^* + DF = I + DF$	$k_{50} = 1.0 \times 10^{-14}$

续表 3

Reaction equation	Reaction constant	Reaction equation	Reaction constant
$\text{NCl}(a) + \text{Cl}_2 = \text{NCl}(x) + \text{Cl}_2$	$k_{19} = 4.0 \times 10^{-13}$	$\text{I}^* + \text{IF} = \text{I} + \text{IF}$	$k_{51} = 1.3 \times 10^{-11}$
$\text{NCl}(a) + \text{F} = \text{NCl}(x) + \text{F}$	$k_{20} = 2.2 \times 10^{-11}$	$\text{I}^* + \text{ICl} = \text{I} + \text{ICl}$	$k_{52} = 2.3 \times 10^{-11}$
$\text{NCl}(a) + \text{F}_2 = \text{NCl}(x) + \text{F}_2$	$k_{21} = 4.0 \times 10^{-14}$	$\text{I}^* + \text{He} = \text{I} + \text{He}$	$k_{53} = 5.0 \times 10^{-18}$
$\text{NCl}(a) + \text{HCl} = \text{NCl}(x) + \text{HCl}$	$k_{22} = 1.3 \times 10^{-14}$	$\text{F} + \text{I}_2 = \text{IF} + \text{I}$	$k_{54} = 4.3 \times 10^{-10}$
$\text{NCl}(a) + \text{DCI} = \text{NCl}(x) + \text{DCI}$	$k_{23} = 1.3 \times 10^{-14}$	$\text{I} + \text{F}_2 = \text{IF} + \text{F}$	$k_{55} = 1.9 \times 10^{-14}$
$\text{NCl}(a) + \text{ClF} = \text{NCl}(x) + \text{ClF}$	$k_{24} = 5.5 \times 10^{-12}$	$\text{Cl} + \text{I} + \text{M} = \text{ICl} + \text{M}$	$k_{56} = 6.3 \times 10^{-32}$
$\text{NCl}(a) + \text{HF} = \text{NCl}(x) + \text{HF}$	$k_{25} = 8.2 \times 10^{-13}$	$\text{Cl} + \text{Cl} + \text{He} = \text{Cl}_2 + \text{He}$	$k_{57} = 8.37 \times 10^{-35}$
$\text{NCl}(a) + \text{DF} = \text{NCl}(x) + \text{DF}$	$k_{26} = 8.2 \times 10^{-13}$	$\text{Cl} + \text{Cl} + \text{Cl} = \text{Cl}_2 + \text{Cl}$	$k_{58} = 8.37 \times 10^{-34}$
$\text{NCl}(a) + \text{HI} = \text{NCl}(x) + \text{HI}$	$k_{27} = 6.9 \times 10^{-11}$	$\text{Cl} + \text{Cl} + \text{Cl}_2 = \text{Cl}_2 + \text{Cl}_2$	$k_{59} = 4.19 \times 10^{-34}$
$\text{NCl}(a) + \text{DI} = \text{NCl}(x) + \text{DI}$	$k_{28} = 6.9 \times 10^{-11}$	$\text{I} + \text{I} + \text{He} = \text{I}_2 + \text{He}$	$k_{60} = 3.74 \times 10^{-33}$
$\text{NCl}(a) + \text{He} = \text{NCl}(x) + \text{He}$	$k_{29} = 8.0 \times 10^{-21}$	$\text{I} + \text{I} + \text{I}_2 = \text{I}_2 + \text{I}_2$	$k_{61} = 4.10 \times 10^{-30}$
$\text{NCl}(a) + \text{I}_2^* = \text{NCl}(x) + \text{I} + \text{I}$	$k_{30} = 3.0 \times 10^{-10}$	$\text{I} + \text{I} + \text{HI} = \text{I}_2 + \text{HI}$	$k_{62} = 8.00 \times 10^{-32}$
$\text{NCl}(b) + \text{Cl} = \text{NCl}(a) + \text{Cl}$	$k_{31} = 3.6 \times 10^{-14}$	$\text{I} + \text{I} + \text{I} = \text{I}_2 + \text{I}$	$k_{63} = 5.86 \times 10^{-30}$
$\text{NCl}(b) + \text{Cl}_2 = \text{NCl}(a) + \text{Cl}_2$	$k_{32} = 1.8 \times 10^{-12}$		

利用(16)式可以估计各个反应对光通量的影响。在精度要求不高($<10\%$)的情况下,(16)式化简为

$$f(x) = \frac{1}{\alpha_{\text{th}}} [k_{10} N_{\text{NCl}(a)} N_1 - k_{12} N_{\text{NCl}(x)} N_1^*],$$

式中 N_1 和 N_1^* 为固定值, $N_{\text{NCl}(a)}(x)$ 与 $N_{\text{NCl}(x)}(x)$ 可以由下式得到

$$u \frac{dN_{\text{NCl}(a)}}{dx} = k_8 N_{\text{Cl}} N_{\text{N}_3} + \sum_{i=31}^{39} k_i N_i N_{\text{NCl}(b)} + k_{12} N_1^* N_{\text{NCl}(x)} - k_{11} N_1 N_{\text{NCl}(a)} - 2k_{17} N_{\text{NCl}(a)}^2 - \sum_{i=17}^{30} k_i N_i N_{\text{NCl}(a)} - k_{10} N_{\text{NCl}(a)} N_1, \quad (17a)$$

$$u \frac{dN_{\text{NCl}(x)}}{dx} = k_7 N_{\text{Cl}} N_{\text{N}_3} + \sum_{i=10}^{11} k_i N_{\text{NCl}(a)} N_1 + \sum_{i=18}^{30} k_i N_i N_{\text{NCl}(a)} - k_{12} N_1^* N_{\text{NCl}(x)} - 2k_{16} N_{\text{NCl}(x)}^2. \quad (17b)$$

4.2 分析与评价

在(17a)和(17b)式中各项的大小相当而不能进行充分的化简,所以得不到光子通量沿流动方向分布和输出功率的解析式,各类反应对 AGIL 性能影响的详细信息请参考已经发表的模拟计算结果^[14~16]。在(17a)式中,我们关心的项为抽运反应项 $k_{11} N_1 N_{\text{NCl}(a)}$, 而最大项为 NCl(a) 的自淬灭项 $2k_{17} N_{\text{NCl}(a)}^2$, 通常获得最大输出功率的碘用量 N_1 为 $N_{\text{NCl}(a)}$ 的百分之几, 如果用 1997 年的自淬灭数据 ($7.2 \times 10^{-12} \text{ cm}^3/\text{s}$)^[17], 则光腔开始部分 NCl(a) 自淬灭为抽运反应的几十倍, 2002 年对 NCl(a) 自淬灭数据进行了重新测定^[18], 约为 $7 \times 10^{-13} \text{ cm}^3/\text{s}$, 则光腔开始部分 NCl(a) 自淬灭为抽运反应的几倍。尽管光腔内沿流动方向抽运反应所占份额会逐渐增加, 但总体上讲 NCl(a) 的利用率会因为 NCl(a) 的自淬灭反应而大大降低^[15]。其他粒子包括 F, HI, ClF, I_2 和 IF 对 NCl(a) 的淬灭作用也很大, Cl, I_2 , IF 和 ICl 对激发态碘原子 I^* 的淬灭作用也很大, 但这些粒子可以通过原料选择和流量控制使其含量降

到最低。比如用 DI 作碘原子源。DCI 作 Cl 原子源等。NCl(a) 的双分子自淬灭无法避免, 目前可能的控制方法是寻找合适的反应温度, 在保证其他反应速度满足实验要求的前提下, 使 NCl(a) 的双分子自淬灭最小, 这需要对大量相关化学反应的动力学温度依赖关系进行确定。

由分析可知, 仅从化学反应的复杂性和能量的提取效率来讲, 基于 NCl(a)-I 传能的 AGIL 相对 COIL 要复杂得多, 提取效率要低一些。但是由于 AGIL 所用的原料全为气体, 可以大大降低储能粒子发生器的体积和重量, 从而整体上提高了体积和重量效率, 同时极大地缩短了出光前的准备时间, 并适用于诸如微重力环境下的应用。所以总体上讲, AGIL 的优势较为明显。目前 HN_3/Cl 反应是较为成熟的生成储能粒子 NCl(a) 的技术方案, 而 HN_3 本身的问题, 又造成基于 HN_3/Cl 反应的 AGIL 的前景变得极不明朗。 HN_3 的问题主要是易爆, 储存分压低, 出于安全的考虑, 通常储存分压低于 26.66kPa, 储存分压低导致的直接后果就是储存效

率(体积效率和重量效率)非常低,从而降低了整个系统的体积效率和重量效率。

5 结 论

利用连续流光腔动力学模型,对 COIL 和 AGIL 体系中相关的物理化学反应进行了具体分析和公式推导,得到了 COIL 光腔内光子通量沿流动方向的分布和输出功率的简化计算公式,为 COIL 能量的提取提供了简便的计算公式;通过分析发现,尽管快速的抽运逆反应限制了 $O_2(a)$ 的利用效率, $O_2(a)$ 的大部分能量仍然可以通过光腔提取并转化为激光输出。由于 AGIL 的体系较为复杂,不能得到光腔内光子通量沿流动方向的分布和输出功率的简化计算公式,但通过相关项的比较,能够估计各个反应对光腔内光子通量的影响。结果表明对 AGIL 功率提取影响较大,目前没有有效控制手段的是 $NCl(a)$ 的双分子自猝灭反应;其他也有很多对储能粒子 $NCl(a)$ 或激发态 I^* 影响很大的粒子存在,需要通过原料选择和流量控制等手段来尽量降低其不利影响。从反应过程看,AGIL 较 COIL 复杂,能量提取效率较低,期望使用全气体原料从而大幅度提升总体效率的设想,由于目前 HN_3/Cl 技术路线的 HN_3 问题而变得更加不明朗。所以,为了发挥 AGIL 的优势,就目前的 HN_3/Cl 技术路线来讲,怎样提高 HN_3 的储存效率已经成为提升整个系统效率的关键问题之一。当然,也可以寻求其他产生储能粒子 $NCl(a)$ 的方法,甚至于寻求其他储能粒子,这将是一个艰苦而漫长的过程。

参 考 文 献

- 1 J. V. Kasper, G. C. Pimentel. Atomic iodine photodissociation laser [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 1964, **5**(11): 231~233
- 2 J. V. Kasper, J. H. Parker, G. C. Pimentel. Iodine-atom laser emission in iodine photolysis [J]. *J. Chem. Phys.*, 1965, **43**: 1827~1828
- 3 W. E. McDermott, N. R. Pchelkin, D. J. Benard *et al.*. An electronic transition chemical laser [J]. *Appl. Phys. Lett.*,

- 1978, **32**(8): 467~470
- 4 T. T. Yang, R. D. Bower. $I(^2P_{1/2})$ produced from the energy transfer from $NCl(a)$ to $I(^2P_{3/2})$ [C]. *SPIE*, 1990, **1225**: 430~435
- 5 A. J. Ray, R. D. Coombe. An I^* laser pumped by $NCl(a)$ [J]. *J. Phys. Chem.*, 1995, **99**: 7849~7852
- 6 J. M. Herbelin, T. L. Henshaw, B. D. Rafferty *et al.*. The measurement of gain on the 1.315 μm transition of atomic iodine in a subsonic flow of chemically generated $NCl(a)$ [J]. *Chem. Phys. Lett.*, 1999, **299**: 583~588
- 7 T. L. Henshaw, Gerald C. Manke II, T. J. Madden *et al.*. A new energy transfer chemical laser at 1.315 μm [J]. *Chem. Phys. Lett.*, 2000, **325**: 537~544
- 8 G. C. Manke II, C. B. Cooper, S. C. Dass *et al.*. A multi-watt all gas-phase iodine laser [J]. *IEEE J. Quantum Electron.*, 2003, **39**(8): 995~1002
- 9 G. C. Manke II, C. B. Cooper, S. C. Dass *et al.*. A multi-watt all gas-phase iodine laser [C]. *SPIE*, 2004, **5334**: 1~10
- 10 G. C. Manke II, T. J. Madden, C. B. Cooper *et al.*. The measurement of gain in a supersonic combustion-driven generator for $NCl(a)$ [C]. *SPIE*, 2005, **5792**: 97~108
- 11 L. P. Duo, S. K. Tang, J. Li *et al.*. Parametric study of $NCl(a)$ and $NCl(b)$ from the reaction of $Cl/Cl_2/He + HN_3/He$ [J]. *J. Phys. Chem. A*, 2002, **106**: 743~746
- 12 S. K. Tang, L. P. Duo, Y. Q. Jin *et al.*. Experimental study on the all gas-phase iodine laser using microwave discharge of Cl_2/He as a Cl atoms source [J]. *Appl. Opt.*, 2006, **45**(27): 7126~7130
- 13 L. P. Duo, S. K. Tang, H. J. Yu *et al.*. Experimental study of discharge characteristics and fluorine atom yield on DC discharge of NF_3/He [C]. *SPIE*, **63462s**-1~6
- 14 S. K. Tang, L. P. Duo, B. L. Yang *et al.*. Effect of $NCl(a)$ self-annihilation on the performance of $NCl(a)$ -I laser [C]. *SPIE*, 2005, **5777**: 260~269
- 15 Tang Shukai, Duo Liping, Sang Fengting. Effect of $NCl(a^1\Delta)$ self-annihilation on $NCl(a^1\Delta)$ production and transfer [J]. *J. Optoelectronics • Laser*, 2005, **16**(1): 21~23
唐书凯,多丽萍,桑凤亭. $NCl(a^1\Delta)$ 自猝灭对自身生成和传输的影响 [J]. *光电子 • 激光*, 2005, **16**(1): 21~23
- 16 Tang Shukai, Duo Liping, Sang Fengting. Influence of $NCl(a^1\Delta)$ self-annihilation on energy extraction of $NCl(a^1\Delta)$ /I laser [J]. *Chinese J. Lasers*, 2005, **32**(4): 501~505
唐书凯,多丽萍,桑凤亭. $NCl(a^1\Delta)$ 自猝灭对 $NCl(a^1\Delta)$ /I 激光能量提取的影响 [J]. *中国激光*, 2005, **32**(4): 501~505
- 17 T. L. Henshaw, S. D. Herrera, G. W. Haggquist *et al.*. Kinetics of $NCl(a)$ via photodissociation of ClN_3 [J]. *J. Phys. Chem. A*, 1997, **101**: 4048~4056
- 18 A. V. Komissarov, G. C. Manke II, S. J. Davis *et al.*. Rate constants for quenching and self-annihilation of $NCl(a)$ [J] *J. Phys. Chem. A*, 2002, **106**: 8427~8434