

# 纯化学燃烧驱动的 HBr 化学激光

唐书凯, 多丽萍\*, 金玉奇, 王增强, 于海军, 王元虎, 李留成, 李国富, 周冬建, 汪 健, 曹 靖, 桑凤亭

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** 对以  $D_2$  为燃料、 $NF_3$  为氧化剂的纯化学燃烧驱动的 HBr 化学激光进行了研究。抽运反应为  $H + Br_2 \rightarrow HBr(v \leq 6, J) + Br$ , 氢原子由  $F + H_2 \rightarrow HF + H$  反应提供, 氟原子则由  $D_2/NF_3$  混合气体燃烧热解生成, 激光提取所需的低温低压和快速流动条件由超音速流动系统完成。对由全反射镜和部分反射(98%)输出镜组成的稳定腔进行了能量提取, 获得了  $P_2(4)$ 、 $P_2(5)$ 、 $P_3(5)$  和  $P_3(6)$  的稳定激光输出, 最大激光输出功率为 14.3 W。

**关键词** 激光物理; 化学激光; HBr; 燃烧驱动; 中红外激光

**中图分类号** O436

**文献标识码** A

**doi**: 10.3788/CJL201744.0501005

## Purely Chemical Combustion-Driven HBr Chemical Laser

Tang Shukai, Duo Liping, Jin Yuqi, Wang Zengqiang, Yu Haijun, Wang Yuanhu,

Li Liucheng, Li Guofu, Zhou Dongjian, Wang Jian, Cao Jing, Sang Fengting

Key Laboratory of Chemical Lasers, Dalian Institute of Chemical Physics, Chinese Academy of Sciences,

Dalian, Liaoning 116023, China

**Abstract** The purely chemical combustion-driven HBr chemical laser has been studied using  $D_2$  as fuel and  $NF_3$  as oxidant. The pumping reaction is  $H + Br_2 \rightarrow HBr(v \leq 6, J) + Br$ . Hydrogen and fluorine atoms are produced by the reaction of  $F + H_2 \rightarrow HF + H$  and burning  $D_2/NF_3$  mixtures, respectively. And a supersonic flow system provides conditions of low temperature, low pressure and fast flowing to satisfy the need of laser extraction. The stable laser output at  $P_2(4)$ 、 $P_2(5)$ 、 $P_3(5)$  and  $P_3(6)$  with the maximum output power of 14.3 W is obtained, when we extract energy from the stable cavity consisted of a totally reflection mirror and a partially reflection mirror (98%).

**Key words** laser physics; chemical laser; HBr; combustion-driven; mid-infrared laser

**OCIS codes** 140.3280; 140.1550; 140.3070

## 1 引 言

HBr 激光的波长为  $4 \sim 5 \mu m$ , 在光谱学、遥感、医疗、环保及军事等领域都有重要的应用前景。HBr 激光的实现方式有化学反应、放电引发和光泵等。在 1978—1986 年期间, HBr 激光的实现主要采用化学反应<sup>[1-4]</sup>和放电引发<sup>[5-8]</sup>的形式。而 1994—2009 年, 光抽运 HBr 的研究<sup>[9-18]</sup>占主导地位, 这一期间几乎没有基于化学反应和放电引发的 HBr 激光研究的报道, 仅在 2007 年和 2008 年出现了 HF-HBr 双波段化学激光的数值模拟计算<sup>[19-20]</sup>。

燃烧驱动的 HBr 化学激光最早出现在 1978 年, 是由加拿大的 Arnold 等<sup>[1]</sup>完成的, 出光功率为 0.58 W, 激光输出谱线为  $P_1(4)$ 、 $P_1(5)$  和  $P_1(6)$ , 他们采用了如下的化学反应原理:  $NO + ClO_2 \rightarrow NO_2 + ClO$ ,  $NO + ClO \rightarrow NO_2 + Cl$ ,  $Br_2 + Cl \rightarrow BrCl + Br$ ,  $Br + HI \rightarrow HBr(v \leq 2) + I$ ,  $HBr(v, J) + h\nu \rightarrow HBr(v-1, J+1) + 2h\nu$ 。

1979 年, 美国的 Donald 在一个连续波超音速 HF 化学激光的氢气流中混入液溴蒸气<sup>[2]</sup>, 获得了 HBr 激

收稿日期: 2016-12-27; 收到修改稿日期: 2017-02-14

基金项目: 国家自然科学基金重大项目(21590803)、中国科学院战略性先导科技专项(B类, XDB17010300)

作者简介: 唐书凯(1972—), 男, 博士, 副研究员, 主要从事化学激光方面的研究。

E-mail: shukaitang@hotmail.com

\* 通信联系人。E-mail: dlp@dicp.ac.cn

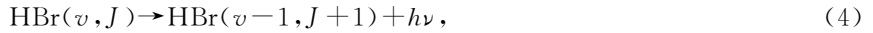
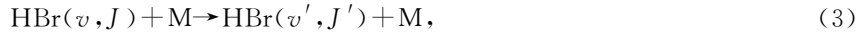
光的小信号增益,但由于其装置的增益区短,加上腔镜的原因,没有进行出光实验。他们采用的技术路线如下: $D_2 + F_2 \rightarrow DF + F$ ,  $F + H_2 \rightarrow HF + H$ ,  $H + Br_2 \rightarrow HBr(v \leq 6) + Br$ 。

1986年,美国的Meinzer等<sup>[4]</sup>在Donald的技术基础上<sup>[2]</sup>,实现了总功率为1.5 W的激光输出。并且,他们获得了21条激光谱线,涵盖了 $v=4 \rightarrow v=3$ 、 $v=3 \rightarrow v=2$ 、 $v=2 \rightarrow v=1$ 和 $v=1 \rightarrow v=0$ 的激光跃迁。同年,法国的Voignier<sup>[3]</sup>采用另外的技术路线,实现了总功率为25 W的激光输出,其激光谱多数情况下为 $P_1(5)$ 、 $P_1(6)$ 和 $P_1(7)$ ,其技术路线如下: $F_2 + 2HBr \rightarrow 2HF + 2Br$ ,  $Br + HI \rightarrow HBr(v \leq 2) + I$ 。

本文采用的技术方案与Donald和Meinzer的类似,不同之处在于本课题组采用 $NF_3$ 作为氧化剂与 $D_2$ 燃烧热解产生氟原子,这种燃烧方式更加安全。用耦合输出率为2%的稳定腔进行了能量提取,获得了 $P_2(4)$ 、 $P_2(5)$ 、 $P_3(5)$ 和 $P_3(6)$ 的稳定激光输出,总功率最高为14.3 W。

## 2 实验部分

图1为实验装置示意图,主要由进气系统、燃烧室、单狭缝拉法尔喷管和光腔组成,其详细参数已在文献<sup>[21-22]</sup>中进行了描述。实验过程简述如下: $D_2$ 和 $NF_3$ 在燃烧室燃烧,产生一个温度至少为1300 K的高温环境,将过量的 $NF_3$ 充分热解成氟原子,同时防止氟原子复合成 $F_2$ 。燃烧室内含大量氟原子的高温高压气流,经单狭缝拉法尔喷管后变成高速流动的低温低压气流。在喷管出口处注入 $H_2/Br_2$ 混合气体,与高速流动的含氟原子的低温低压气流混合,并发生如下化学反应:



式中, M 可以为体系内的任何粒子。(4)式只列出了与本文讨论部分相关的基频P支自发辐射,实际上还存在基频的R支自发辐射和各级泛频的自发辐射。这些辐射的存在,使HBr的振-转激发态在生成后处于不断变化的过程中。这些过程非常复杂,决定了HBr振-转激发态的寿命。通常来讲,振动能级越高,向下能级变化的速度越快,而同一振动能级的转动粒子数分布则由温度决定,服从热力学统计分布。在 $H_2/Br_2$ 混合气体加入口下游适当的位置安置光腔,由(4)式产生的极少部分满足谐振条件的自发辐射光子在光腔里通过受激辐射过程,即 $HBr(v, J) + h\nu \rightarrow HBr(v-1, J+1) + 2h\nu$ 反应不断放大,最终形成激光输出。本文采用了由凹面高反镜和耦合输出率为2%的平面镜组成的稳定腔结构,腔镜口径( $\Phi$ )均为40 mm,光轴位置距 $H_2/Br_2$ 混合气体加入口33 mm。激光输出光谱用傅里叶光谱仪(Thermo Fisher Scientific, model: NICOLET 6700)采集和记录,激光功率用功率计(COHERENT POWERMAX, model: PM150-50)测量和记录。

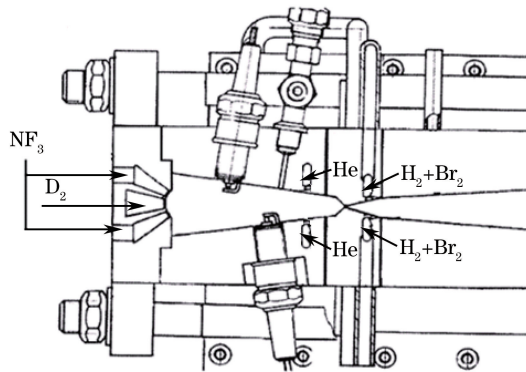


图1 实验装置示意图

Fig. 1 Schematic diagram of the experimental setup

## 3 结果与讨论

典型的激光输出光谱如图2所示。大部分实验均能获得明显的 $P_2(4)$ 、 $P_2(5)$ 、 $P_3(5)$ 和 $P_3(6)$ 的激光输

出。其中,  $P_2(5)$ 、 $P_3(5)$  和  $P_3(6)$  非常明显;  $P_2(4)$  相对较弱, 但通过大量的实验证实, 其位置和强度都是重复的, 可以确认为激光输出。目前, 基于  $D_2/NF_3$  燃烧的纯化学 HBr 化学激光还没有文献报道, 本文采用的技术方案与 Meinzer 等<sup>[4]</sup> 的最为接近, 不同之处有以下几点: 1) 氧化剂, Meinzer 用  $F_2$  作氧化剂, 而实验采用相对更为安全的  $NF_3$  作氧化剂。2) 运转条件不同, Meinzer 的燃烧室和光腔压力都很低, 分别为 6.4 kPa 和 0.027 kPa, 而本实验的燃烧室和光腔压力较高, 分别为 86.1 kPa 和 0.35 kPa。仅从各自的光腔压力/燃烧室压力比值来看, 两个实验所用的喷管马赫数相差不会太大。3) 耦合输出率, Meinzer 使用的反射镜和输出镜的反射率都大于 99.5%。本实验所使用的高反镜反射率大于 99.5%, 而输出镜的反射率为 98% 左右。4) 功率, 本实验获得的出光总功率为 14.3 W, Meinzer 的出光总功率为 1.5 W, 本实验所用的燃料  $D_2$  流量约为 Meinzer 的 10 倍, 所以从燃料效率来讲, 两者差异不大。5) 激光光谱, 两者最大的差别在于激光光谱不同, Meinzer 等人获得了涵盖  $P_1(x)$ 、 $P_2(x)$ 、 $P_3(x)$  和  $P_4(x)$  等共 21 条谱线, 而本文仅获得  $P_2(4)$ 、 $P_2(5)$ 、 $P_3(5)$  和  $P_3(6)$  共 4 条谱线。造成激光光谱巨大差异的可能原因包括以下两个方面: 1) 光腔压力, 能否谐振输出, 在于上下能级是否发生反转、反转程度是否满足增益大于损耗的谐振要求, 以及同一振动能级的转动能级之间的增益竞争造成的增益动态变化是否破坏了增益大于损耗的谐振基本条件。正如 (3) 式所示, 生成的 HBr 振-转激发态粒子数会因为各种驰豫过程而发生变化, 腔压越高, 驰豫过程越快, 导致反转程度下降, 从而使很多在低压下能反转谐振出光的激光谱线消失。本实验的燃烧室压力和光腔压力与 Voignier<sup>[3]</sup> 所作实验相近, 获得的功率和激光光谱数量相当, 最大的不同是 Voignier 采用溴原子和 HI 反应生成振-转激发态的 HBr, 而本实验采用的是氢原子和  $Br_2$  反应产生振-转激发态的 HBr。2) 腔镜反射率, 腔镜的耦合输出率是导致增益小于损耗的可能原因, 耦合输出率大, 会造成部分反转度不够高的激光谱线消失。

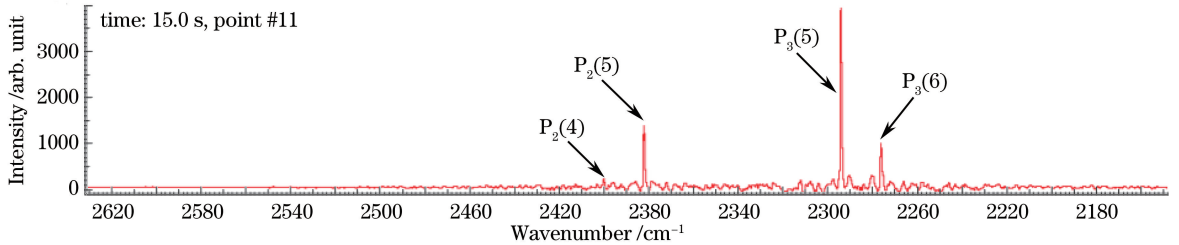


图 2 典型的激光输出光谱

Fig. 2 Typical laser output spectrum

激光输出的总功率用功率计测得, 通过参数优化, 出光功率从最初的几百毫瓦增加至 14.3 W。总输出功率为 14.3 W 时对应的流量参数为:  $D_2$  73 mmol/s,  $NF_3$  74 mmol/s, 燃烧室中 He 592 mmol/s,  $H_2$  206 mmol/s,  $Br_2$  40 mmol/s, 此时燃烧室压力为 86 kPa, 光腔压力为 0.35 kPa。图 3 是用 NICOLET 6700 傅里叶光谱仪采集的典型的出光全程激光输出光谱, 出光时间为 6 s。从图中可以看出,  $P_2(5)$  和  $P_3(5)$  的强度随时间的变化幅度较小; 而  $P_3(6)$  的强度随时间的增加则不断升高, 可能是因为燃烧室和光腔的温度随时间的增加有一定程度的升高, 而温度的升高有利于高  $J$  部分振-转激发态粒子数分布, 从而有利于高  $J$  部分的激光输出。

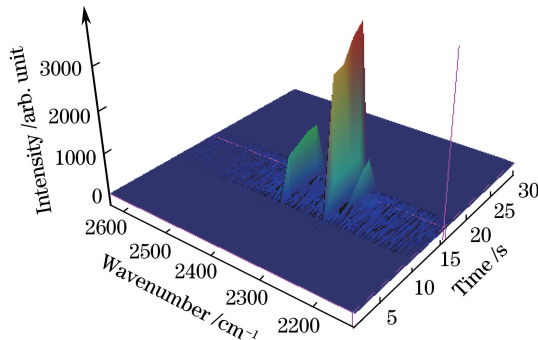


图 3 典型的出光全程激光输出光谱

Fig. 3 Typical laser output spectrum during the whole acquisition time

液溴是有毒且腐蚀性强的液体,为了实现大流量连续供给,还需要对其进行加热,这些特点使得液溴的储存、使用、计量和尾气处理等各个环节都需要特殊的技术支持,这也是制约 HBr 化学激光快速发展的一个重要原因。经过不断的改进,本实验对上述各方面的问题都有了一些较好的处理方案,但这些方案在安全性、准确性和时间效率上还有较大的完善空间。另一个可能的解决方案就是寻找好的溴原子提供体,这也是今后研究的一个重要方向。

## 4 结 论

用  $\text{NF}_3$  作为氧化剂的安全性比用  $\text{F}_2$  的更高,但目前基于  $\text{D}_2/\text{NF}_3$  燃烧的纯化学 HBr 化学激光在国内外还没有公开报道。本文对基于  $\text{D}_2/\text{NF}_3$  燃烧的纯化学 HBr 化学激光进行了研究。用耦合输出率为 2% 的稳定腔进行了能量提取,获得了  $\text{P}_2(4)$ 、 $\text{P}_2(5)$ 、 $\text{P}_3(5)$  和  $\text{P}_3(6)$  的稳定激光输出,总功率最高为 14.3 W。纯化学燃烧驱动 HBr 化学激光实现了较高压力的运转,燃烧室压力接近一个大气压,光腔压力为 0.13 ~ 0.52 kPa。与最类似的  $\text{D}_2/\text{F}_2$  燃烧驱动纯化学 HBr 化学激光的各项参数进行比较发现,激光输出光谱的巨大差异来源于不同的光腔压力和腔镜耦合输出率。

## 参 考 文 献

- [1] Arnold S J, Foster K D. A purely chemical HBr laser[J]. *Appl Phys Lett*, 1978, 33(8): 716-717.
- [2] Miller D J, Shackelford W L, Emanuel G. Chemical production of vibrationally excited HBr for a continuous wave laser [J]. *Appl Phys Lett*, 1979, 35(7): 506-508.
- [3] Voignier F. Combustion-driven cw HBr chemical laser [M]// Rosenwaks S. *Gas Flow and Chemical Lasers*. Heidelberg: Springer Proceedings in Physics, 1986: 180-182.
- [4] Meinzer R A, Dobbs G M. HBr cw combustion-driven laser [M]// Rosenwaks S. *Gas Flow and Chemical Lasers*. Heidelberg: Springer Proceedings in Physics, 1987: 183-188.
- [5] Iyoda M, Udagawa M, Obara M, *et al.* Numerical analysis of the output performance of a pulsed HBr chemical laser [J]. *J Appl Phys*, 1979, 50(9): 5615-5623.
- [6] Rutt H N. A high-energy hydrogen bromide laser[J]. *J Phys D: Appl Phys*, 1979, 12: 345-353.
- [7] Horwitz A B, Leone S R. Versatile, isotopically specific hydrogen halide TEA pin laser[J]. *Rev Sci Instrum*, 1979, 50(7): 811-816.
- [8] Arrowsmith P, Polanyi J C, Telle H H, *et al.* Short-cavity hydrogen-halide laser[J]. *Appl Opt*, 1983, 22(17): 2716-2720.
- [9] Miller H C, Radzykewycz D T J, Hager G. An optically pumped mid-infrared HBr laser[J]. *IEEE J Quantum Elect*, 1994, 30(10): 2395-2400.
- [10] Lowenthal D D, Hamilton C E, Tidwell S C, *et al.* 20-watt output power Tm<sup>3+</sup> YAG laser driver for HBr mid-IR laser [C]. *SPIE*, 1995, 2502: 483-489.
- [11] Azarov M A, Iskhakov V A, Mashendzhinov V I, *et al.* Computer modelling of the pulsed DF-HBr optical resonance transfer laser[J]. *SPIE*, 1997, 3092: 598-601.
- [12] Miller H C, Radzykewycz D, Hager G. Diode-pumped Tm<sup>3+</sup> YAG/HBr four micron laser system: US5774490 A[P/OL]. [2017-3-10]. <http://www.google.com/patents/US5774490>.
- [13] Kletecka C S, Rudolph W G, Nicholson J W, *et al.* Cascade lasing of molecular HBr in the four-micron region pumped by a Nd<sup>3+</sup> YAG laser[C]. *SPIE*, 2002, 4760: 594-602.
- [14] Jones C R, Campbell R N, Kletecka C, *et al.* Efficient scalable optically pumped HBr laser[C]. *SPIE*, 2004, 5448: 350-358.
- [15] Burtsev A P, Burtseva I G, Mashendzhinov V I, *et al.* New HBr-laser with resonant optical pumping by DF-laser radiation[C]. *SPIE*, 2004, 5479: 174-176.
- [16] Burtsev A P, Burtseva I G, Mashendzhinov V I, *et al.* Lasing of molecular HBr in the four micron region pumped by a DF-laser[C]. *SPIE*, 2005, 5777: 582-530.
- [17] Ratanavis A, Nampoothiri V, Campbell N, *et al.* Optically pumped HBr gas laser operating in regions of high atmospheric transmission[C]. *SPIE*, 2008, 7005: 70051P.
- [18] Botha L R, Bollig C, Esser M J D, *et al.* Ho<sup>3+</sup> YLF pumped HBr laser[J]. *Opt Express*, 2009, 17(22): 20615-20622.

- [19] Aleksandrov B P, Stepanov A A. Numerical simulation of double-band cw HF-HBr chemical laser[C]. SPIE, 2007, 6735: 673509.
- [20] Aleksandrov B P, Katorgin B I, Stepanov A A. Simulation of a two-frequency cw chemical HF-HBr laser[J]. Quantum Electronics, 2008, 38(10): 903-908.
- [21] Tang Shukai, Duo Liping, Jin Yuqi, *et al.* Small signal gain measurement of combustion-driven all gas-phase iodine laser[J]. Chinese J Lasers, 2010, 37(7): 1704-1707.  
唐书凯, 多丽萍, 金玉奇, 等. 燃烧驱动全气相碘激光的小信号增益测试[J]. 中国激光, 2010, 37(7): 1704-1707.
- [22] Tang S K, Duo L P, Sang F T, *et al.* Combustion parametric optimization for all gas-phase iodine laser driven by  $D_2/NF_3/DCI$  combustion and self-pooling of  $NCl(a)$  catalyzed by  $NF(a)/NF(b)$ [J]. J Phys Chem A, 2010, 114(2): 741-744.