

燃烧驱动溴化氢化学激光器的数值模拟

李辉^{1,2*}, 范庭轩³, 贾淑芹¹, 李留成¹, 怀英^{1**}

¹中国科学院大连化学物理研究所化学激光重点实验室, 辽宁 大连 116023;

²中国科学院大学, 北京 100049;

³南京大学化学化工学院, 江苏 南京 210023

摘要 采用敏感性分析方法研究了溴化氢(HBr)化学激光器的反应机理,分析了主导反应和关键参数之间的关系。分析了温度、压力及关键中间物的敏感性系数,确定了温度对 HBr 不同振动态布居的有效性调控。利用计算流体力学(CFD)研究了 HBr 化学激光增益发生器,给出了流场内部的温度、浓度分布。结果表明:当 HBr 化学激光器的内部初始反应温度在 500 K 左右时,能获得高振动态的输出。

关键词 激光器; 溴化氢化学激光器; 增益发生器; 敏感性分析; 计算流体力学

中图分类号 TN248.5

文献标识码 A

doi: 10.3788/CJL201845.1101004

Numerical Simulation of Combustion Driven HBr Chemical Lasers

Li Hui^{1,2*}, Fan Tingxuan³, Jia Shuqin¹, Li Liucheng¹, Huai Ying^{1**}

¹Key Laboratory of Chemical Lasers, Dalian Institute of Chemical Physics, Chinese Academy of Sciences, Dalian, Liaoning 116023, China;

²University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China;

³School of Chemistry and Chemical Engineering, Nanjing University, Nanjing, Jiangsu 210023, China

Abstract In order to identify the relationship between main reaction and key parameters, we use the sensitivity analysis method to study the reaction mechanism of HBr chemical laser. The sensitivity coefficients of temperature, pressure and key intermediate product are analyzed, and the effectiveness of temperature on controlling the distribution of HBr is confirmed. A gain generator of HBr chemical laser is studied by computational fluid dynamics, and the distributions of temperature and concentration are given, respectively. The research results show that high vibrational state is obtained at the initial temperature of 500 K.

Key words lasers; HBr chemical lasers; gain generator; sensitivity analysis; computational fluid dynamics

OCIS codes 140.1550; 140.3450; 000.4430

1 引 言

连续波溴化氢(HBr)化学激光器的波长处于中红外区,在医疗、环保以及军事防御等领域都有着广泛的应用前景。燃烧驱动的 HBr 化学激光器的结构包含燃烧室、增益发生器、光学谐振腔和压力恢复系统^[1]。调控激光器的谱线输出一直是高能 HBr 化学激光器研究的重点和难点之一。其中,增益发生器是输运反应介质的元件,决定了介质的反应环境(温度、压力等),其性能直接决定了激光器的输出

功率^[2]。合适的参数和增益发生器结构是提升 HBr 激光器性能的关键。相比于其他的化学激光器,HBr 化学激光器的发展较为缓慢。Arnold 等^[3]对 HBr 化学激光器进行了初步研究;Meinzer 等^[4-5]实现了 HBr 激光谱线输出;唐书凯等^[6]采用 D₂/NF₃体系进行了纯化学燃烧驱动的实验研究。与实验研究相比,数值仿真在研究高超声速含有毒气体的复杂体系时具有独特的优势。然而,仅有少数研究人员针对 HBr 化学激光器进行了数值模拟。Iyoda 等^[7]采用 H₂-Br₂ 混合的方法对脉冲 HBr 化

收稿日期: 2018-05-22; 修回日期: 2018-06-21; 录用日期: 2018-06-26

基金项目: 国家自然科学基金(21573218)、中国科学院战略性先导科技专项(B类)资助(XDB17010300)

* E-mail: lihui07@dicp.ac.cn; ** E-mail: huaiying@dicp.ac.cn

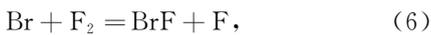
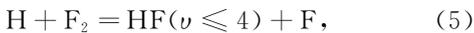
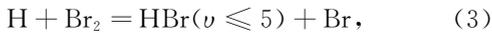
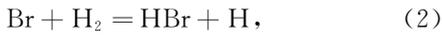
学激光进行了初步的数值分析;Miller 等^[8]给出了 H₂ 和 Br₂ 的混合反应机理;Aleksandrov 等^[9]采用计算流体力学(CFD)的方法研究了双频率 HF-HBr 高能化学激光。目前,关于 HBr 激光增益发生器中反应环境与化学反应机理之间相互影响机制的研究鲜有报道,而这种影响机制是设计与分析 HBr 增益发生器的重要基础。

为了分析增益发生器中化学反应环境和化学反应机理之间的相互作用机制,本文采用敏感性分析方法分析了影响增益产生过程的主导反应和关键参数,重点研究了温度对 HBr 不同振动态布居的影响。根据机理分析结果,设计了一种 HBr 增益发生器,并利用 CFD 方法模拟了其流场结构及主要增益特性。

2 数值模型

2.1 化学反应的动力学模型

反应机理是研究激光器内部真实反应过程的关键,也是数值仿真准确性和合理性的决定性因素。结合文献[6,9-10]提供的反应动力学模型,构建了包含 16 个反应介质和 59 个基元反应的 HBr 化学激光器反应包。HBr 化学激光器反应机理中产生振动态分布的 HBr(*v*)的主要步骤如下。



式中:*v* 为分子的振动能级。

超声速 HBr 化学激光器的结构复杂,反应介质多,反应过程快,这些都极大地增大了实验和数值理论研究的难度。为了研究某一输入条件对整体反应过程的影响,本研究采用敏感性分析方法。

2.2 敏感性分析方法

敏感性分析是一种分析输入参数和化学反应过程相互作用关系的数值方法,能够直观地描述化学激光的关键参数对反应过程的影响机制。对于均质反应体系,变量 *Y* 随时间的变化可以通过求解一般偏微分方程得出,即

$$\frac{dY_i}{dt} = f(Y, x), \quad (10)$$

式中:*x* 为参数变量,如速率系数、热力学数据等。在特定时刻,变量 *x* 对浓度的影响可以由 Taylor 展开式得到:

$$Y_i(t, x + \Delta x) = Y_i(t, x) \sum_{j=1}^m \frac{\partial Y_i}{\partial x_j} \Delta x_j + \frac{1}{2} \sum_{k=1}^m \sum_{j=1}^m \frac{\partial^2 Y_i}{\partial x_k \partial x_j} \Delta x_k \Delta x_j + \dots, \quad (11)$$

式中:*t* 为时间;*Y_i* 为第 *i* 个组分的浓度项; $\partial Y_i / \partial x_j$ 为一阶敏感性系数; $\partial^2 Y_i / (\partial x_k \partial x_j)$ 为二阶局部敏感性系数。归一化的敏感性系数可以表示为 $S = (x_j / Y_i) (\partial Y_i / \partial x_j)$ ^[11]。采用均质反应模型模拟反应机理随时间的演化过程,同时通过 SENKIN^[12] 程序计算获得归一化的敏感性矩阵。敏感性分析方法能够快速直观地给出输入参数对整体反应的影响机制,体现从反应过程出发优化设计化学激光器结构的思路。

2.3 计算流体控制方程

化学激光的体系复杂,且运行在低压下,这对实验研究提出了挑战。对化学激光增益发生器内化学流场的研究主要是利用 CFD 的思想,模拟从燃烧室输出的混合气流的亚跨超音速流动和化学反应。计算系统包括可压缩 Navier-Stokes 方程、能量方程以及各组分输运方程的守恒形式,可以统一为

$$\underbrace{\frac{\partial \rho \Phi}{\partial t}}_{\text{accumulation}} + \underbrace{\frac{\partial \rho \Phi v_i}{\partial x_i}}_{\text{convection}} = \underbrace{\frac{\partial}{\partial x_i} \left(\Gamma_\Phi \frac{\partial \Phi}{\partial x_i} \right)}_{\text{diffusion}} + \underbrace{S_{\text{chem}} + S_{\text{rad}}}_{\text{source}}, \quad (12)$$

式中: ρ 为密度; Φ 为通用变量,可以代表速度、内能、组分浓度等求解变量;*v_i* 为各个方向上的速率; Γ 为扩散系数; S_{rad} 为辐射通量源项; S_{chem} 为化学反应源项。利用 2.1 节介绍的包含 16 个反应介质、59 个基元反应的 HBr 化学激光器反应包,通过有限层流反应模型计算化学反应源项。

3 分析讨论

3.1 反应机理分析

采用封闭均质反应器模型,分析不同初始参数条件下 HBr 化学激光器的反应机理。初始温度 *T* 为 298~1000 K,初始压力 *p* 为 670~2670 Pa。重点分析温度和氢原子的敏感性系数。图 1 所示为温度敏感性系数随时间变化的曲线,可以看出,在反应初始阶段, $F + H_2 = HF + H$ 、 $Br + H_2 = HBr(0) + H$ 、 $H + Br_2 = HBr(0) + Br$ 反应对温度起着重要的

正相关作用,也是加速反应进行的关键步骤,适当提高反应温度能够产生更多的初始振动态 $\text{HBr}(\nu)$ 。 $\text{F} + \text{H}_2 = \text{HF} + \text{H}$ 能够极大地促进振动态 $\text{HBr}(\nu)$ 的生成^[8],但是, $\text{H} + \text{Br}_2 = \text{HBr}(0) + \text{Br}$ 的反应焓 ΔH 为 -173 kJ/mol ,剧烈的放热反应极易造成激光器内部“热堵塞”。为了进一步分析反应过程对压力的影响,对比了 $t = 2.96 \times 10^{-4} \text{ s}$ 时不同压力条件下的敏感性系数,如图 2 所示,可以看出,压力对反应过程的影响几乎可以忽略不计。(3)式是产生振动态 HBr 的关键反应,其中的氢原子浓度决定着振动态 HBr 的产生。氢原子在整个反应过程中起着承前启后的关键作用,图 3 给出了决定氢原子敏感性系数的相关反应: $\text{Br} + \text{H}_2 = \text{HBr}(0) + \text{H}$, $\text{F} + \text{H}_2 = \text{HF} + \text{H}$ 和 $\text{H} + \text{BrF} = \text{HF} + \text{Br}$,这些反应也是决定产生初始振动态 HBr 的关键反应。随着反应的进行, $\text{Br} + \text{H}_2 = \text{HBr}(0) + \text{H}$ ($\Delta H = 70 \text{ kJ/mol}$) 的作用增强,体系温度降低,极大地促进了 $\text{HBr}(0)$ 的生成,对调节产物配比极为不利。

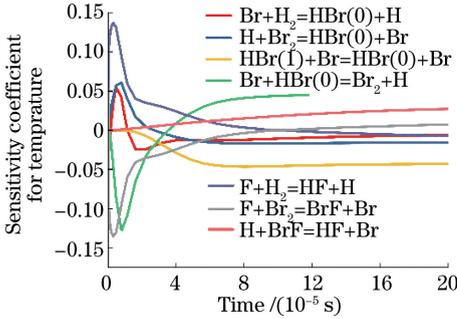


图 1 温度敏感性系数随时间的变化曲线

Fig. 1 Evolution of sensitivity coefficient with time

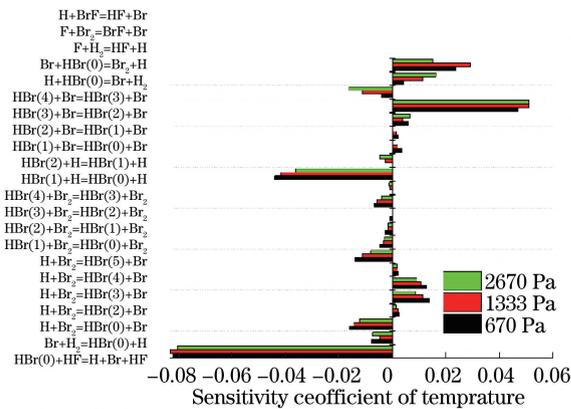


图 2 不同压力下的温度敏感性系数 ($t = 2.96 \times 10^{-4} \text{ s}$)

Fig. 2 Sensitivity coefficient for temperature at different pressures ($t = 2.96 \times 10^{-4} \text{ s}$)

燃烧驱动的 HBr 化学激光体系输出的谱线比较宽泛,为了得到相对集中布居的谱线,必须对激光

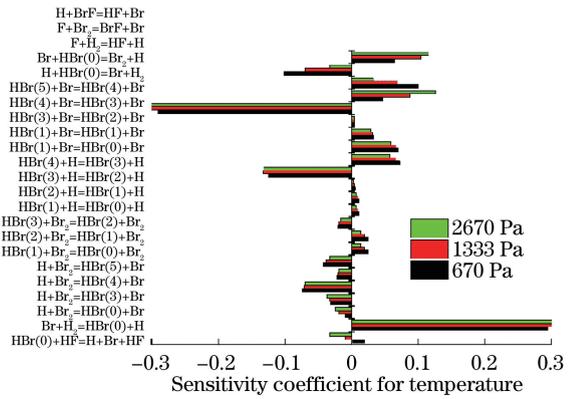


图 3 氢原子敏感性系数关系图 ($t = 2.96 \times 10^{-4} \text{ s}$)

Fig. 3 Sensitivity coefficient for hydrogen atom ($t = 2.96 \times 10^{-4} \text{ s}$)

谱线进行筛选。这本质上也是调节激光器内部反应的过程,以尽可能得到高振动态特定产物的分布。由敏感性结果分析可知,温度对化学激光器反应体系的影响较大,也是影响激光器性能的关键流场参数^[13]。因此,对不同初始温度下的 $\text{HBr}(\nu)$ 产物布居进行了数值分析,结果如图 4 所示。可以看出:在温度为 298、400、500、800 K 时, $\text{HBr}(2)$ 的物质的量分数分别为 0.0687、0.0720、0.0737、0.0746;随着温度升高, $\text{HBr}(2)$ 与 $\text{HBr}(0)$ 的质量分数之比逐渐缓慢增大,当温度为 500 K 左右时,比值接近 1.0;在温度 $T = 500 \text{ K}$ 时, $\text{HBr}(\nu = 0, 1, 2, 3, 4)$ 的物质的量分数分别为 0.0745、0.3032、0.0737、0.0302、0.0093,此时能够得到较高浓度高振动态的目标产物,故以 500 K 作为初始反应的设计温度。

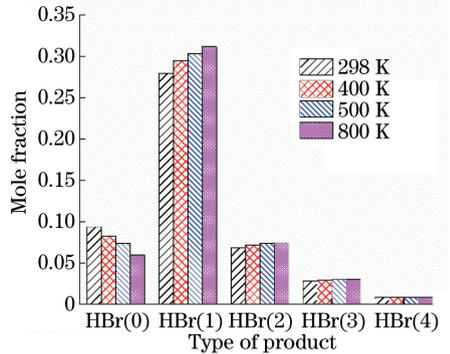


图 4 不同初始温度下 $\text{HBr}(\nu)$ 产物的分布关系图

Fig. 4 Distribution of $\text{HBr}(\nu)$ at different original temperatures

3.2 内流场结果分析

由于增益发生器的前端连接着燃烧室,温度较高,因此一般采用超音速喷管对气流膨胀降温,并提升增益量级。根据上述反应机理的分析结果,并考虑到温度对光学器件的影响,可以知道,

要得到较高浓度的 HBr(2), 较为理想的温度应为 500 K 以上, 压力接近 3000 Pa。设计的增益发生器(即数值计算区域)如图 5 所示, 主喷管与燃烧室相接, 燃烧室温度为 2500 K, 压力为 $1.27 \times$

10^6 Pa。根据这样的入口条件, 设计主喷管的马赫数为 5, 副喷管输入 Br₂ 和 H₂, 边界条件如表 1 所示。此气动设计基本保证了增益反应器的初始反应温度为 500 K。

表 1 HBr 化学激光仿真模拟边界条件

Table 1 Boundary conditions of HBr chemical lasers

Inlet	Pressure / (10 ⁴ Pa)	Temperature / K	Mole fraction / %			
Primary nozzle	127	2500	0.1647(F)	0.2532(HF)	0.0995(N ₂)	0.482(He)
Secondary nozzle	5.32	300	0.2502(H ₂)	0.7498(Br ₂)		

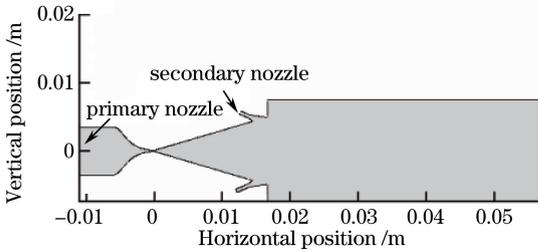


图 5 数值计算区域示意图

Fig. 5 Schematic of numerical calculation area

图 6 所示为增益发生器内流场中心线上的温度分布, 可以看出: 从燃烧室输出的含氟原子的高温气流经超音速喷管加速膨胀降温后进入超音速区, 在增益发生器内与副喷管喷出的 H₂ 发生快速、复杂的化学反应, 氢原子与 Br₂ 反应生成 HBr(v)。为了实现 HBr(2) 的高浓度输出, 气动设计基本保证了上述机理分析结果所要求的 500 K 的反应温度。

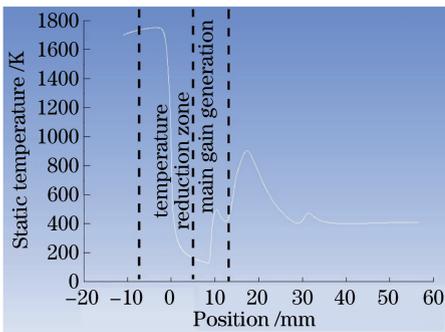


图 6 喷管中心线上的温度分布

Fig. 6 Temperature distribution at the nozzle centerline

在图 7 中可以看出, HBr(2) 与 HBr(0) 的质量分数之比基本保持不变, 与 3.1 节的反应机理基本一致, 说明所提设计方案能获得具有较高振动态布居的增益发生器。

4 结 论

通过分析 HBr 化学激光器的关键参数对整体反应结果的影响, 设计了新的 HBr 化学激光器增益发生器。重点分析了激光器参数和化学反应机理的

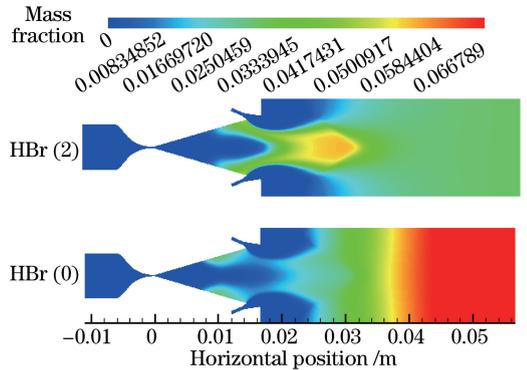


图 7 HBr(2) 和 HBr(0) 的质量分数分布图

Fig. 7 Distributions of mass fraction of HBr(2) and HBr(0)

相互作用机制, 以及 HBr 激光器内的流场结构和主要特性。根据机理分析结果设计了 HBr 激光器的增益发生器, 通过数值仿真演化了通过反应机理设计优化激光器关键参数的过程, 总结了相关目标谱线调控的有效性和规律性。研究表明, 增益发生器内保持 500 K 左右的温度时, 目标产物 HBr(2) 与 HBr(0) 的质量分数之比约为 1:1。

参 考 文 献

- [1] Gross R W F, Bott J F, Reed A H. Handbook of chemical lasers [J]. Journal of the Electrochemical Society, 1977, 124(7): 235C-236C.
- [2] Huai Y, Wu K N, Jia S Q, et al. Influence of flow structures on supersonic chemical oxygen-iodine laser output with numerical analysis [J]. Chinese Journal of Lasers, 2013, 40(11): 1102005. 怀英, 吴克难, 贾淑芹, 等. 化学氧碘激光器内流场结构对出光性能影响的数值分析 [J]. 中国激光, 2013, 40(11): 1102005.
- [3] Arnold S J, Foster K D. A purely chemical HBr laser [J]. Applied Physics Letters, 1978, 33(8): 716-717.
- [4] Meinzer R A, Dobbs G M. HBr cw combustion-driven laser [C]. Gas Flow and Chemical Lasers, 1987: 183-188.
- [5] Voignier F. Combustion-driven cw HBr chemical

- laser[C]. *Gas Flow and Chemical Lasers*, 1987: 180-182.
- [6] Tang S K, Duo L P, Jin Y Q, *et al.* Purely chemical combustion-driven HBr chemical laser[J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2017, 44(5): 0501005.
唐书凯, 多丽萍, 金玉奇, 等. 纯化学燃烧驱动的 HBr 化学激光[J]. *中国激光*, 2017, 44(5): 0501005.
- [7] Iyoda M, Udagawa M, Obara M, *et al.* Numerical analysis of the output performance of a pulsed HBr chemical laser[J]. *Journal of Applied Physics*, 1979, 50(9): 5615-5623.
- [8] Miller D J, Shackelford W L, Emanuel G. Chemical production of vibrationally excited HBr for a continuous wave laser[J]. *Applied Physics Letters*, 1979, 35(7): 506-508.
- [9] Aleksandrov B P, Katargin B I, Stepanov A A. Simulation of a two-frequency cw chemical HF-HBr laser[J]. *Quantum Electronics*, 2008, 38(10): 903-908.
- [10] Manke G C II, Hager G D. A review of recent experiments and calculations relevant to the kinetics of the HF laser[J]. *Journal of Physical and Chemical Reference Data*, 2001, 30(3): 713-733.
- [11] Turányi T. Sensitivity analysis of complex kinetic systems. Tools and applications [J]. *Journal of Mathematical Chemistry*, 1990, 5(3): 203-248.
- [12] Lutz A E, Kee R J, Miller J A. SENKIN: a Fortran program for predicting homogeneous gas phase chemical kinetics with sensitivity analysis [R/OL]. (1988-02-01)[2018-05-20]. <https://www.osti.gov/biblio/5371815-senkin-fortran-program-predicting-homogeneous-gas-phase-chemical-kinetics-sensitivity-analysis>.
- [13] Yuan S F, Zhao Y J, Hua W H, *et al.* Dependence of CW DF/HF chemical laser performance on the flowfield parameters[J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2001, 28(5): 402-406.
袁圣付, 赵伊君, 华卫红, 等. CW DF/HF 化学激光器性能与流场参数的相互关系[J]. *中国激光*, 2001, 28(5): 402-406.