

碘离解和淬灭对氧碘化学激光气动特性影响的计算*

束小建

(北京应用物理与计算数学研究所, 北京 100088)

摘 要: 氧碘化学激光中的水汽对其运行和性能有着重要的影响。建立了考虑淬灭的单重态氧产额和变截面定常一维流的方程组, 编制了程序, 采用 Radicl 的参数进行了计算, 研究了碘离解和淬灭对氧碘化学激光气体流动特性的影响, 初步分析了变截面的作用和设计考虑。

关键词: 氧碘化学激光; 气动特性; 淬灭; 变截面; 数值模拟

中图分类号: TN248.5 **文献标识码:** A

氧碘化学激光(COIL)中由于采用BHP液体制备激发态氧而存在水汽。混合气体中的水汽会对COIL的运行和性能产生很重要的影响。其影响是多方面的,直接的影响是引起激发态氧和激发态碘的淬灭,归结为单重态氧产额的减少,导致增益、功率和效率的下降。此外,淬灭放热将引起COIL气动性能的变化,升高混合气体的温度,影响化学反应的速率,再加上马赫数和速度的降低及压力和密度的变化,导致增益、功率和效率的下降。当水汽多到一定的程度时,甚至产生热堵塞现象,使超声速流完全崩溃,装置无法运行。开展淬灭对COIL的影响的理论研究和数值计算具有重要的意义,不仅有助于深化对COIL机理的理解,而且对实验工作以及装置的设计有实际意义。

本文建立了主要由水汽引起的淬灭对单重态氧产额影响的方程和考虑淬灭放热的变截面定常一维流的方程组,编制了程序,采用Radicl的参数进行了计算,研究了碘离解和淬灭对COIL气体流动特性的影响,初步分析了变截面的作用和设计考虑。

1 碘离解

$O_2(^1\Delta_g)$ 将碘分子离解为碘原子的过程还不是很清楚,目前一般采用 Heidner 提出的碘离解的自催化链反应机理^[1],引入振动量子数大于 42 的高振动激发态碘分子 $I_2(v=42)$ 这一中间态来描述这一机理。在考虑碘离解对 $O_2(^1\Delta_g)$ 产额 Y 的影响时,按实验测量,可简单地认为离解 1 个碘分子需要 4 到 5 个 $O_2(^1\Delta_g)$ 分子^[2]。我们取 4,则有

$$Y_1 = Y_0 - 4N_{I_2}/N_{O_2,t} = Y_0 - 4\dot{x}_{I_2}/\dot{x}_{O_2,t} \quad (1)$$

式中: N_{I_2} , $N_{O_2,t}$ 分别是 I_2 和所有氧气的数密度, \dot{x}_{I_2} , $\dot{x}_{O_2,t}$ 是相应的摩尔流量。

在 1 摩尔 I_2 离解的过程中所放出的反应热^[3]为

$$Q = 2.74 \times 10^4 R \quad (2a)$$

式中: $R = 8.314 \text{ J}/(\text{mol} \cdot \text{K})$ 是通用气体常数。按 $O_2(^1\Delta_g)$ 计算, $O_2(^1\Delta_g)$ 分子的能量有 60% 变成反应热放出,另外的 40% 转化为 I 的能量,碘离解过程单位时间放出的热量为

$$\dot{Q} = (Y_0 - Y_1) \dot{x}_{O_2,t} \times 1.14 \times 10^4 \times 0.6 R \quad (2b)$$

这部分热量被混合气体吸收后将引起气体总温的提高,在忽略了 I_2 离解成 I 引起的混合气体比热的变化后,气体总温的增加为

$$T = \dot{Q} / C_{p,m} \dot{x} \quad (3)$$

式中: $C_{p,m}$ 是混合气体的摩尔定压热容; \dot{x} 是总的摩尔流量。

2 淬灭

H_2O , He 的存在将引起激发态氧、碘的淬灭,即激发态氧分子、碘分子通过和 H_2O , He 分子以及容器壁

* 收稿日期: 2002-06-16; 修订日期: 2002-09-19

基金项目: 国家 863 计划项目资助课题

作者简介: 束小建(1963-), 男, 博士, 研究员, 主要从事氧碘化学激光、自由电子激光等理论研究; 北京 8009 信箱; E-mail: shu.xiaojian@mail.iapcm.ac.cn.

材料分子的碰撞而去激发,其能量被弛豫到分子的动能,转化成热能。所以,淬灭的直接后果是激发态氧产额的下降和温度的升高。不考虑能量在超精细内部结构和速度空间弛豫的速率,即认为能量在超精细能级内部各能级上是均分的,在速度空间的分布是热力学平衡分布。只考虑 H_2O 引起的淬灭,在准稳态(激发态碘浓度不随时间变化)近似条件下,可得到 Y 变化的方程^[4~6]

$$\frac{dY}{dt} = -k_{\text{H}_2\text{O}} x_{\text{H}_2\text{O}} N_{\text{I}^*} - k_{\text{P}} Y N_{\text{I}^*} \quad (4a)$$

$$N_{\text{I}^*} = Y N_{\text{I},t} / \left(Y + \frac{1-Y}{k_{\text{eq}}} + \frac{k_{\text{P}}}{k_{\text{F}}} Y + \frac{k_{\text{H}_2\text{O}}}{k_{\text{F}}} x_{\text{H}_2\text{O}} \right) \quad (4b)$$

式中: $x_{\text{H}_2\text{O}} = N_{\text{H}_2\text{O}} / N_{\text{O}_2,t} = \dot{x}_{\text{H}_2\text{O}} / \dot{x}_{\text{O}_2,t}$ 是水汽和氧气数密度之比; $N_{\text{I},t} = N_{\text{I}^*} + N_{\text{I}} = 2N_{\text{I}_2}$ 是碘的总数密度; $k_{\text{eq}} = k_{\text{F}} / k_{\text{R}}$ 是 $\text{O}_2(\)$ 近共振传能激发 I 反应的平衡速率, k_{F} 是正向反应的速率; $k_{\text{H}_2\text{O}}$ 是水汽对激发态碘 I^* 淬灭反应的速率; $k_{\text{P}} = k_{\text{P1}} + k_{\text{P2}} + k_{\text{P3}}$ 是 $\text{O}_2(\)$ 和 I^* 之间 3 个自淬灭反应的速率之和^[6]。

表 1 列出了反应速率。取 $Y = 0.5$, $x_{\text{H}_2\text{O}} = 0.1$, 当 $T = 300\text{K}$ 时, 估算(4b)式分母各项分别为 0.5, 0.17, 1.4×10^{-3} 和 2.6×10^{-3} ; $T = 150\text{K}$ 时为 0.5, 0.05, 6.1×10^{-4} 和 1.3×10^{-3} , 所以后两项可以忽略。而(4a)式右边两项是同量级的, 因此化简(4b)式并代入(4a)式得到

$$\frac{dY}{dt} = - (k_{\text{H}_2\text{O}} x_{\text{H}_2\text{O}} + k_{\text{P}} Y) \frac{k_{\text{eq}} Y N_{\text{I},t}}{1 + (k_{\text{eq}} - 1) Y} \quad (5)$$

表 1 化学反应速率表

Table 1 Rate constants of reactions

notation	k_{eq}	k_{F}	$k_{\text{H}_2\text{O}}$	k_{P1}	k_{P2}	k_{P3}
rate / [$\text{cm}^3 \cdot (\text{s} \cdot \text{particle})^{-1}$]	$0.75e^{401.4/T}$	$2.33 \times 10^{-8}/T$	2.0×10^{-12}	$4.0 \times 10^{-24} T^{3.8} e^{700/T}$	1.1×10^{-13}	0

采用准稳态近似,忽略了将 I 激发到 I^* 的暂态过程中 $\text{O}_2(\)$ 的消耗和 Y 的减少。同样忽略 I^* 变化过程中 $\text{O}_2(\)$ 和 I^* 之间微小的能量差别,单位时间放出的热量是

$$\dot{Q} = 1.14 \times 10^4 (-dY) \dot{x}_{\text{O}_2,t} R \quad (6)$$

这部分热量被混合气体吸收后所引起气体总温的增加可以用(3)式计算。

3 方程与程序

COIL 中的喷管由 3 部分组成。第 1 部分是平直段,主、副气流在此进入。第 2 部分是拉伐尔(收敛扩张)喷管,喉部前后各有一段弧线区。第 3 部分是线性扩张段,扩张(半)角是 θ 。

作为一维近似,我们假定主、副气流在喷管前两部分完成混合和碘的离解,并且认为此过程是等熵的,可以利用变截面理想气体定常一维绝热等熵流的结果。因此在线性扩张段入口处,产额由(1)式得到,总温按照能量守恒和理想气体近似得到,马赫数由喷管的几何参数决定,这些构成了问题的初值。

考虑淬灭的关于马赫数 Ma 和温度 T 的变截面定常一维非绝热流的方程组^[7]为

$$dMa = Ma \frac{1 + [(1 - \gamma)/2] Ma^2}{Ma^2 - 1} \frac{dA}{A} - Ma \frac{1 + Ma^2}{2(Ma^2 - 1)} \frac{dT}{T} \quad (7a)$$

$$dT = T \frac{(1 - \gamma) Ma^2}{Ma^2 - 1} \frac{dA}{A} + \frac{Ma^2 - 1}{Ma^2 - 1} T \quad (7b)$$

式中: A 和 dA 分别是线性扩张段的截面面积及变化; γ 是混合气体的等熵参数。

同样在准稳态近似条件下,忽略压强决定的碰撞线宽(Lorentzian linewidth),只考虑温度决定的 Doppler 线宽,小信号增益为^[2,4~6]

$$g = \frac{7}{12} \frac{2.23 \times 10^{-16} N_{\text{I},t}}{\sqrt{T}} \frac{Y(2k_{\text{eq}} + 1) - 1}{2 Y(k_{\text{eq}} - 1) + 1} \quad (8)$$

g 与碘密度成正比,由于 k_{eq} 是温度的指数函数, g 与温度的关系比较复杂,但对 T 求导可以发现(8)式最后一个分式随 T 的减小而单调增加,与前面一项与 T 的平方根成反比的变化趋势是同方向的。

我们采用 4 阶显式变步长龙格-库塔方法求解常微分方程组,用总能量,即总温作为守恒量,计算出产额和混合气体的气动参数以及小信号增益。

4 结果分析与讨论

采用美国 Phillips 实验室 RADICL (Research Assessment Device Improvement Chemical Laser) 装置的参数^[2,8,9],一组是没有调整的,我们称它为 Radicl1;一组是 Madden 进行三维数值模拟后为了与实验符合而调整的^[8],我们称它为 Radicl2;计算参数见表 2。此外, $\theta = 3^\circ$ 。

表 2 计算所用气动参数

Table 2 Radicl test flow conditions used in calculations

	Radicl1	Radicl2
primary flow		
T_0/ K	300	300
$p_0/ 133Pa$	72	79
utilization	0.94	0.94
yield	0.5	0.38
molar flow rate/ (mol s^{-1})		
He	1.5	1.5
O ₂ (total)	0.46	0.46
H ₂ O	0.1	0.052
Cl ₂	0.039	0.039
secondary flow		
T_0/ K	435	465
$p_0/ 133Pa$	240	247
molar flow rate/ (mol s^{-1})		
He	0.65	0.65
I ₂	0.007 5	0.007 2

Radicl1 参数组中水汽含量高, x_{H_2O} 高达 21.7%, 淬灭很严重, 计算结果见表 3, 其中 $x = 0$ 是线性扩张段的起始点。碘离解使 Y 从 0.5 减少到 0.435, 淬灭又引起产额的进一步减少, 在光腔处分别为 0.414 和 0.362, 总共减少了 17.2% 和 27.6%。此外, 淬灭还引起马赫数的下降。如果不考虑淬灭对混合气体的影响, 不考虑附面层, 则由于截面的增加, 马赫数增加, 在这 3 个点分别是 2.44, 2.63 和 2.88。而淬灭放热的结果却导致马赫数减少, 如表 3 所示, 分别下降了 8.3%, 18% 和 26%。值得注意的另一点是: 由于截面的增加, 淬灭引起的马赫数的减少被逐渐抵消, 截面的增加与淬灭二者达到平衡, 马赫数不再变化。特别是碘离解和淬灭还导致温度的上升, 在光腔处 ($x = 9.4cm$) 高达 177 K, 而在不考虑碘离解和淬灭时在这 4 个点分别只有 133 K, 122 K, 110 K 和 98 K; 仅考虑碘离解时马赫数不变, 总温增加, 温度随之在各个点都增加 8.2%, 也仅为 144 K, 132 K, 119 K 和 106 K, 可见淬灭的影响是很严重的, 导致温度大幅度上升, 在光腔处 ($x = 9.4cm$) 上升幅度竟达 67%。这对于增益和饱和都有较大的影响, 严重影响装置的性能和运行。这些结果与用 GASP 程序进行三维数值模拟的结果^[8]是一致的, 小信号增益最大值在光腔上游很远处, 喷管第 3 段开始处就达到了, 此后由于淬灭而不断减小, 无法得到与实验符合较好的结果。但从另一方面看, 主、副气流的混合和碘离解的过程已经在喷管第 1, 2 段完成了, 说明我们的假定和处理是合理的。

表 3 采用 Radicl1 的计算结果

Table 3 Results using Radicl1

x/cm	0	2.1	5	9.4
Y	0.435	0.414	0.390	0.362
Ma	2.275	2.20	2.15	2.13
T/ K	144	156	167	177
g/cm^{-1}	0.002 07	0.001 66	0.001 28	0.000 94

为了得到与实验符合的结果, 必须调整参数, 特别是水汽的含量。Radicl2 参数组中水汽减少了近一半, $x_{H_2O} = 11.3\%$ 。产额也减少到 0.38, 碘流量减少了 4%, 才得到了与实验符合的结果。

采用 Radicl2 参数组, 我们研究了线性扩张段对 COIL 气动性能的影响。分别计算了扩张角 $\theta = 0^\circ, 2^\circ, 3^\circ, 4^\circ$ 四种情况, 发现扩张角 (或者说喷管截面) 的变化的影响很大, 计算结果见图 1。

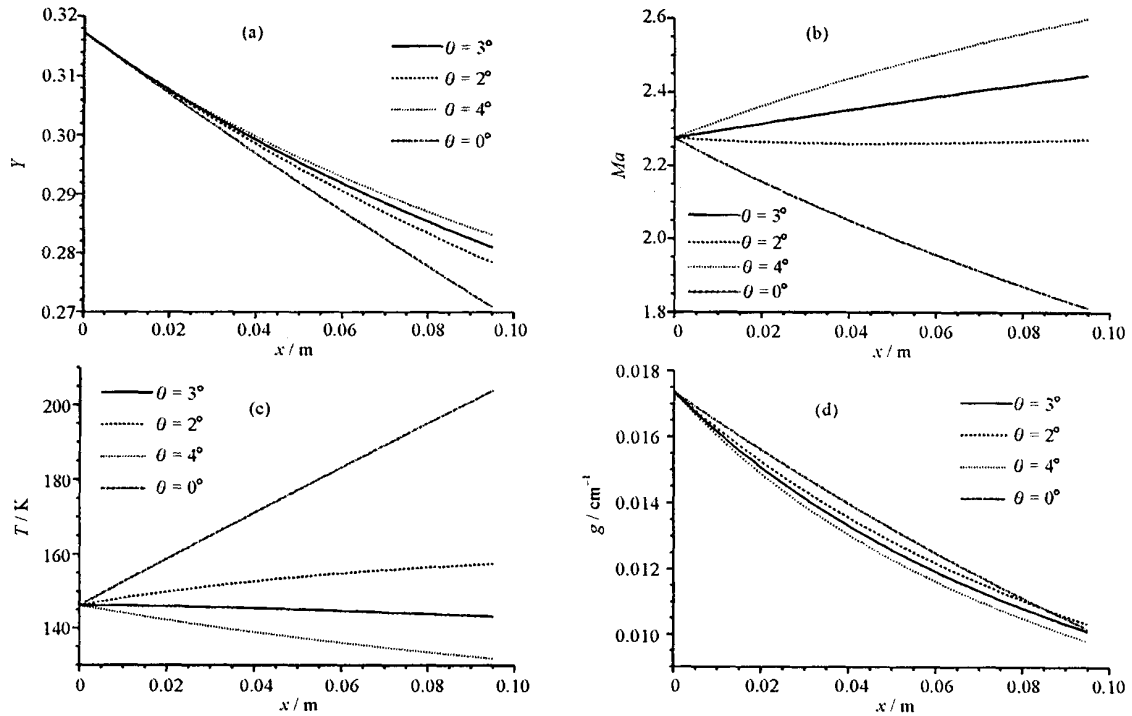


Fig. 1 Yield (a), Mach number (b), temperature (c) and small signal gain (d) vs downstream distance

图1 产额(a),马赫数(b),温度(c)和小信号增益(d)在喷管线性扩张段的变化

在 COIL 的文献中,一般认为扩张角的设计是为了匹配不断增加的附面层的厚度。实际上,扩张角的作用远不止这一点,其主要作用是为了抵消淬灭引起的对 COIL 气动性能的不利影响。若认为扩张角的设计仅仅是为了匹配附面层,即假设流动是等截面的($\dot{m}=0$),则从图 1(c) 可以看到,温度将超过 200 K,COIL 根本无法运行。此外,如图 1(b) 所示, $\dot{m}=0$ 时马赫数持续下降,如果一直发展下去,气流将从超声速状态进入亚声速,这是由于气体吸收热量造成的,即产生所谓“热堵塞”现象。从图 1(c) 还可以看到:采用 3° 的扩张角,温度可以保持不变,从而保证 COIL 在比较好的气动状态下稳定地工作,光腔的位置可以比较灵活地在气流方向移动。

比较图 1(b) 和 1(c),可见保持温度不变所需的扩张角要比保持马赫数不变所需的扩张角大一些。后者在一般的气体动力学著作中已给出^[7]。令方程(7b)等于 0,可以估计抵消淬灭保持温度不变所需的扩张角为

$$\tan \theta = \frac{y_0 C_1}{v} \frac{Ma^2 - 1}{(Ma^2 - 1) Ma^2} \frac{Y(Y + C_3)}{Y + C_2} \frac{\dot{x}_{O_2,t} 1.14 \times 10^4 R}{\dot{x} C_{p,m} T} \quad (9)$$

式中: y_0 是起始处的半高度; v 是气体流速; $C_1 = k_{eq} k_p N_{1,t} / (k_{eq} - 1)$, $C_2 = 1 / (k_{eq} - 1)$, $C_3 = k_{H_2O} x_{H_2O} / k_p$ 。

采用 Radicl2 参数组,用(9)式估算出的 $\theta = 0.06 \text{ rad} = 3.4^\circ$,与数值计算结果和实际情况很好地符合。也说明所调整的参数(特别是水气的含量),与扩张角是匹配的,或者说就是为了与扩张角匹配而调整的参数。由(9)式,若其它参数不变,仅装置尺寸增加,则所需的扩张角与 y_0 成正比,也需要增加。

在 COIL 喷管的设计中,还要考虑有足够的小信号增益。加大扩张角可以提高马赫数,降低温度和密度,对减少淬灭,提高增益和化学效率很有好处。但是,另一方面,密度的下降将导致小信号增益的减小,如图 1(d) 所示。此外,还要考虑尺寸增加而带来的光腔制造和加工上的困难以及采用等面积还是等压通道等。这几个方面的结合决定了扩张角的设计。

某些正在研制的 COIL 实验装置中出现了温度升高、功率和效率下降的现象。甚至出现热堵塞现象,使超声速流完全崩溃,装置无法运行。其原因主要是因为水汽含量高导致很严重的淬灭。解决的根本办法是减少和控制水汽的含量。此外,从方程(4)和(7)可以预计,采用减少碘的流量、降低气体的温度、将光腔位置前移、改变喷管设计以调整工作点(M, T)、加大扩张角等措施对于克服和减弱淬灭的影响都会有一定的作用。但扩张角的大小对后面的扩压器等有影响,需要一体化考虑。

本文只研究了淬灭对 COIL 气动特性的影响,在光腔中光的存在将使情况发生很大的变化。在方程(4)中应加入光子数增加而引起单重态氧减少的那一项,描述单重态氧的化学能转化成激光光能。淬灭和光放大相

互竞争,光激射或受激辐射过程减弱了淬灭,而淬灭除了直接减少了单重态氧的产额,其产生的废热还引起温度等 COIL 气动性能的改变,导致增益、功率和效率的下降。淬灭和光放大这两个 COIL 中的主要过程相互竞争、相互影响、相互耦合,基本决定了 COIL 的性能,值得进一步深入研究。此外,作为预混气体一维简单流模型,为了得到与实验尽可能相符的结果,需要对碘离解率以及所消耗的 $O_2(^1)$ 分子数、喉部面积(马赫数)和扩张角等进行必要的调整和修正。

致谢 与北京应用物理与计算数学研究所的李守先、陈栋泉等同志和中科院大连化物所的金玉奇、桑凤亭等同志进行了富有启发性的讨论,在此表示感谢。

参考文献:

- [1] Heidner R F, Garder C E, Segal G I, et al. Chain reaction mechanism for I_2 dissociation in the $O_2(^1)$ -I atom laser[J]. *J Phys Chem*, 1983, **87**(13):2348—2360.
- [2] Tate R F, Hunt B S, Helms C A, et al. Spatial gain measurements in a chemical oxygen iodine laser(COIL)[J]. *IEEE J Quantum Electron*, 1995, **31**(9):1632—1636.
- [3] Paschkewitz J, Shang J, Miller J, et al. An assessment of COIL physical property and chemical kinetic modeling methodologies[A]. 31st AIAA Plasmadynamics and Lasers Conference[C]. AIAA 2000—2574.
- [4] Zagidullin M V, Igoshin V I, Kupriyanov N L. Kinetics of saturation of the active medium of an oxygen-iodine laser[J]. *Sov J Quantum Electron*, 1984, **14**(7):930—936.
- [5] Copeland D A, Bauer A H. Optical saturation and extraction from the chemical oxygen-iodine laser medium[J]. *IEEE J Quantum Electron*, 1993, **29**(9):2525—2539.
- [6] 杜燕贻,刘兴荣,束小建,等. COIL 简化模型计算[J]. *强激光与粒子束*, 2002, **14**(3):341—344. (Du Y Y, Liu X R, Shu X J, et al. Simplified model calculation for COIL. *High Power Laser and Particle Beams*, 2002, **14**(3):341—344)
- [7] Zucrow M J, Hoffman J D. Gas dynamics (volume D)[M]. USA: John Wiley & Sons Inc, 1976.
- [8] Madden T J, Solomon W C. A detailed comparison of a computational fluid dynamic simulation and a laboratory experiment for a COIL laser[A]. 28th AIAA Plasmadynamics and Lasers Conference[C]. AIAA 97—2387.
- [9] Yang T T, Copeland D A, Bauer A H, et al. Chemical oxygen-iodine laser performance modeling[A]. 28th AIAA Plasmadynamics and Lasers Conference[C]. AIAA 97—2384.

Calculations of the influences of iodine dissociation and quenching on COIL flow properties

SHU Xiao-jian

(Institute of Applied Physics and Computational Mathematics, P. O. Box 8009, Beijing 100088, China)

Abstract: The water vapor has great influence on the performance of a chemical oxygen-iodine laser. The equations for the $O_2(^1)$ yield and steady one-dimensional flow with area change are set up to take into account the quenching. The code is made to calculate the flow properties of the Radicl device. The effects of iodine dissociation and quenching on the flow properties of a chemical oxygen-iodine laser are studied theoretically. The role of area change and the factors in its design are analyzed.

Key words: Chemical oxygen iodine laser(COIL); Flow properties; Quenching; Area change; Simulation