

文章编号: 1001-4322(2008)08-1378-05

雾化 Mg 粉对烟火泵浦源性能的影响*

肖 楠, 姜宗福, 华卫红, 袁圣付

(国防科学技术大学 光电科学与工程学院, 长沙 410073)

摘 要: 为了提高烟火泵浦激光器光泵浦源的效率, 改进了泵浦源的化学配方, 用雾化 Mg 粉部分代替原来的 Al-Mg 合金粉。当 Mg 粉与合金粉的质量比为 1:1 时, 药柱燃速提高为完全用 Al-Mg 粉时的 2.1 倍, 光辐射强度为 2.4 倍; 药粒的燃速提高 2.4 倍, 光辐射强度提高 2.55 倍, 光谱效率也有所提高。分析燃速时建立了烟火药发火后的燃烧模型。模型计算结果是: 当 Mg 粉质量分数为 50% 时, 燃烧时间为完全用 Al-Mg 粉时的 2.3 倍; 全为 Mg 粉时则是 3.6 倍。实验结果是: Mg 粉质量分数为 50% 时, 燃烧时间为完全用 Al-Mg 粉时的 2.4 倍; 全为 Mg 粉时为 3.8 倍。计算结果与实验结果基本吻合。用新的泵浦源进行出光实验, 激光能量由 29 mJ 提高到 147.8 mJ。

关键词: 光泵浦源; 烟火药; 粒径; 燃烧速度; 激光器

中图分类号: TN248; O643 **文献标志码:** A

烟火泵浦激光器的泵浦源由烟火药剂组成。当烟火药点燃时, 化学反应伴随的强光使激光介质达到布居反转, 从而激发激光。与 Xe 灯、Kr 灯、激光二极管等常见泵浦光源相比, 这种光源利用化学能发光, 体积小, 重量轻, 成本低, 以此为泵浦源的晶体激光器可被放入强磁场研究激光晶体电子感应跃迁的塞曼效应。20 世纪 60 年代至今, 国际上一直有关于这种激光器的研究报道^[1-4], 国内研究较少^[5-6]。

本文针对钕玻璃激光器研究改进泵浦源的化学配方, 为满足泵浦钕玻璃需要, 希望烟火药燃烧在较短时间里发出强光辐射, 且辐射光谱尽量接近钕玻璃的吸收光谱。之前的研究工作得到一种烟火药化学配方, 以这种配方制备的泵浦源激发钕玻璃得到激光能量 29 mJ^[7]。本文在此基础上调节可燃剂组分, 以雾化 Mg 粉部分代替原来的 Al-Mg 合金粉, 建立药剂表层燃烧模型, 研究了新配方药剂的燃烧速度、光辐射强度和燃烧光谱。

1 实验配方及原料性质

烟火剂配方中可燃剂的主要成分是 Al-Mg 合金粉, 保持可燃剂占总药剂的质量分数不变, 用雾化 Mg 粉部分取代 Al-Mg 合金粉得到 4 个配方, 其中 Mg 粉占可燃剂的比例见表 1。

每种配方制成两种药型: 一种压制成药柱, 另一种制备成药粒。药柱每个重 190 mg, 为保持实验条件一致, 实验中每次取用的药粒质量也为 190 mg, 并且统一采用电热丝点火, 点火电压均为 60 V 交流电。

雾化 Mg 粉和 Al-Mg 合金粉的性质见表 2。雾化 Mg 粉的平均粒径约为 5.8 μm , 还达不到超微粒子标准(0.001~0.1 μm)^[8], 但在做药过程中已经发现了比较明显的团聚现象。这说明雾化 Mg 粉表现出由于粒径小而导致的表面能增加效应, 团聚现象即是为了降低表面能而自发的凝聚。相对于平均粒径约为 120 μm 的 Al-Mg 合金粉, Mg 粉的比表面积增大了约 20 倍, 这会影响烟火药的反应活性和速度。

表 1 配方中 Mg 粉占可燃剂的比例
Table 1 Proportion between Mg and reducing agent in the formulas

No.	mass fraction of Mg/%
1	66
2	50
3	33
4	0

表 2 雾化 Mg 粉与 Al-Mg 合金粉的性质

Table 2 Properties of pulverized Mg powders and Al-Mg alloy powders

properties	particle size/ μm	melting point/ $^{\circ}\text{C}$	boiling point/ $^{\circ}\text{C}$	heat of combustion/($\text{kJ} \cdot \text{g}^{-1}$)
pulverized Mg powder	5.8	649	1 107	24.7
Al-Mg alloy powder	80~160	463	1 150~1 200	about 24

* 收稿日期: 2007-12-10; 修订日期: 2008-06-28

作者简介: 肖楠(1979—), 女, 博士研究生, 从事激光器方面的研究; xiangxiang_99@163.com。

2 测量结果分析

2.1 燃烧速度

通过测量同质量药剂的燃烧时间,间接得到质量燃速。燃烧的火焰光辐射强度由 Si 探测器接收,由成都泰斯特电子信息公司的 TST3000 动态测试分析仪记录光强随时间的变化曲线。曲线的拖尾较长,此时光强通常不足峰值的 10%。拖尾的这部分光辐射对激励激光介质并形成粒子数反转已经没有贡献,因此取峰值的 10% 位置作为基线来确定燃烧时间比较合理。

表 1 所列 4 种配方的燃烧时间如图 1(a) 所示。图中显示 Mg 粉质量分数越少燃烧时间越长,当质量分数为 50% 的时候,燃烧时间最短。对于药柱,4[#] 的燃烧时间为 2[#] 的 2.1 倍;对于药粒,4[#] 的燃烧时间为 2[#] 的 2.4 倍。也就是说,雾化 Mg 粉的加入,使得药柱和药粒的燃烧速度分别提高为不含 Mg 时的 2.1 倍和 2.4 倍。然而当 Mg 完全取代 Al-Mg 时,燃速提高只有不足 2 倍,是因为氧化剂比较复杂,限制了燃速进一步提高。

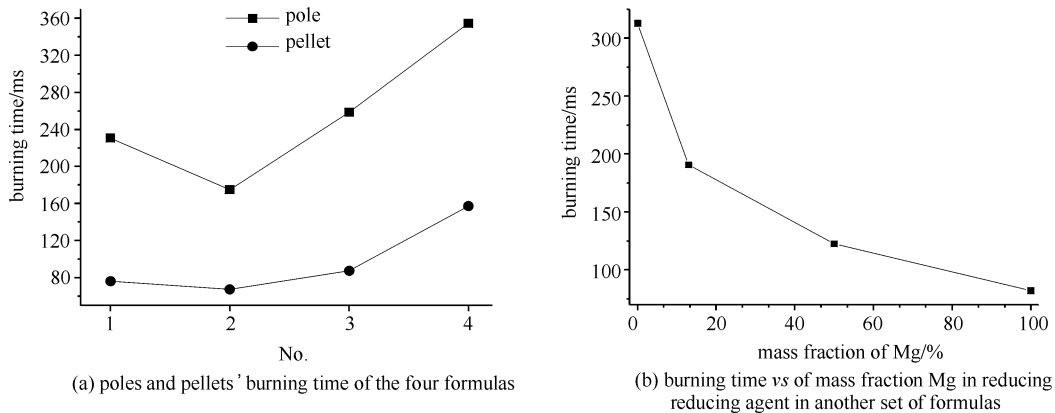


Fig. 1 Comparison of burning time

图 1 燃烧时间比较

为排除氧化剂对燃烧的影响,进行另一组实验。实验中将氧化剂简化为一种,且该氧化剂反应速度非常快,这样可确保在一定范围内,氧化剂对燃速增加无影响。可燃剂仍然用雾化 Mg 粉部分取代 Al-Mg 合金粉, Mg 占可燃剂质量分数分别为 0, 13%, 50%, 100% 的 4 个配方。药粒燃烧时间测量结果见图 1(b)。将时间转换为质量燃速即为:当 Mg 质量分数为 50% 时,燃速为不含 Mg 时的 2.5 倍;全为 Mg 时,燃速为不含 Mg 时的 3.8 倍。

实验得到的燃速变化规律可以用燃烧模型解释。Mg 粉和 Al-Mg 合金粉都易燃,沸点低且比较接近,易于挥发。因此二者在燃烧时都形成气相扩散火焰,可以将燃烧反应看作具有简单级数的反应,并按照质量作用定理写出它的反应速率方程,建立燃烧模型。

药剂发火后,火焰区的反应符合一级反应规律。可燃剂 A 与氧化剂 B 反应得到固体物质 C 的反应式为



反应速率方程为

$$v = k[A][B] \quad (2)$$

式中: k 为速率常数; $[A]$ 为可燃剂浓度; $[B]$ 为氧化剂浓度。同一组实验中只改变可燃剂的粒径,其它不变,所以只有 $[A]$ 为变化量。烟火药的燃烧反应只发生在界面上一层极薄的药剂内,所以 $[A]$ 决定于可燃剂的表层蒸发速率 v_{vapor} , 即

$$[A] \propto v_{\text{vapor}} \quad (3)$$

蒸发速率^[8]可以表示为

$$v_{\text{vapor}} = JS_{\text{surface}} \quad (4)$$

式中: S_{surface} 是反应层表面积; J 为单位面积的蒸发速率,表示为

$$J = KA_s - K'A_g \quad (5)$$

式中: K 和 K' 分别是蒸发和凝聚的速率常数,它与反应条件有关,而采用两种粒径的可燃剂燃烧时,反应条件不变,因此 K 和 K' 相等; A_s 和 A_g 分别是固体表面和蒸气中的原子密度。反应中蒸发出的可燃剂迅速发生燃烧反应,故 A_g 等于零; Al 与 Mg 的分子量相近,则两种可燃剂表面的原子密度近似相等;前面已知反应速率常

数相同,因此 $J_{\text{Al-Mg}}$ 与 J_{Mg} 近似相等。此时由式(4)得出蒸发速率与反应层表面积成正比

$$v_{\text{vapor}} \propto S_{\text{surface}} \quad (6)$$

综合式(2),(3),(6)得

$$v \propto S_{\text{surface}} \quad (7)$$

由于反应是一层层进行的,所以两种可燃剂的蒸发表层可以近似为图 2 所示。图 2(a)是 Al-Mg 粉的表面层结构,图 2(b)是同面积 Mg 粉的表面层结构。Al-Mg 粉的表面积为 $2\pi r_1^2$,Mg 粉(半径为 $r_2 = r_1/20$)作可燃剂时,在 $2\pi r_1^2$ 面积上可容纳的 Mg 粉颗粒有 $2\pi r_1^2/2\sqrt{3}r_2^2 \approx 725$ 个,Mg 粉颗粒的表面积是 Al-Mg 粉表面积的 $725 \times 4\pi r_2^2/2\pi r_1^2$ 倍。由式(6)可知,雾化 Mg 粉完全代替 Al-Mg 粉的时候,燃速提高 3.6 倍,实验结果是 3.8 倍,计算与实验结果比较接近。由于模型没有考虑氧化剂对燃烧的影响,所以计算结果与第 1 组实验中,Mg 完全代替 Al-Mg 的实验结果不同,这是合理的。当雾化 Mg 粉质量分数为 50%时,可以作同样计算,得到燃速是 Al-Mg 粉燃烧时的 $(725 \times 4\pi r_2^2 + 2\pi r_1^2)/4\pi r_1^2 \approx 2.3$ 倍,第 2 组实验的结果为燃速提高 2.5 倍,第 1 组实验的结果对药柱和药粒,燃速分别提高 2.1 倍和 2.4 倍,计算与实验也基本吻合。说明以上模型比较符合真实的燃烧情况。

可燃物粒径影响烟火化学反应速度方面,B. Berger 通过实验给出了如图 3 所示的结果^[9]:当粒径减小为 1/2 时,反应速度最大增加 4 倍多。按照上文建立的燃烧模型,当粒径差距较小时,近似符合表面积与半径平方成正比的规律,所以燃速应该提高 4 倍。这个结论与 B. Berger 的实验结果基本相符。

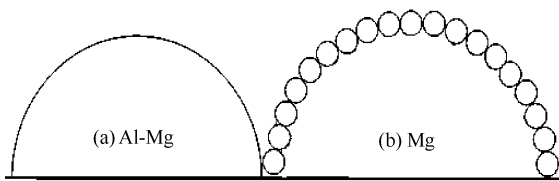


Fig. 2 Vaporizing surface microcosmic structure model of reducing

agents, whose particle sizes vary greatly, when burning

图 2 粒径大小悬殊的两种可燃剂燃烧时蒸发表层的微观结构模型

2.2 光辐射强度

光辐射强度的测量与燃烧时间同时进行。实验结果显示 Mg 粉质量分数越少辐射强度越低。

由表 1 数据可知,两种金属粉的燃烧热相似,如果反应完全则反应热应该接近,而且二者的燃烧性质相同,所以不管采用哪种金属粉作可燃剂,总的反应燃烧热应该相同,即光辐射强度相同。

事实上由于机械混合不均匀、反应物粒径成正态分布、燃烧时间较短(几十 ms 量级)等原因,反应物通常不会完全被消耗。尤其是负氧平衡药剂,在配制火药的时候可燃剂即有剩余,因此可燃剂的消耗量决定了燃烧热,也决定着光辐射强度。

泵浦源药剂的配方为负氧平衡,氧化剂有两种粒径分别为 $74 \mu\text{m}$ 和 $160 \mu\text{m}$,前者占氧化剂总量的 26%,Al-Mg 合金粉的粒径分布与氧化剂相近。当药剂各组分混合均匀时,可以认为药剂结构是相同粒径小球的堆积。而雾化 Mg 粉平均粒径为 $5.8 \mu\text{m}$,远小于氧化剂和 Al-Mg 合金粉,那么含 Mg 粉的药剂即可看作 Mg 粉小颗粒填在氧化剂和 Al-Mg 粉大颗粒之间的结构。

图 2 的微观结构说明小粒径的雾化 Mg 粉具有更大的反应表面积,那么无论与氧化剂还是空气中的氧反应都会更加容易,因此雾化 Mg 粉的加入使金属粉的消耗更多,所以辐射强度增加,这与实验结果相符。

为准确计算雾化 Mg 粉对光辐射强度的影响,将辐射强度随 Mg 粉质量分数数据列于表 3。对于药柱,Mg 粉质量分数为 50% 时辐射强度最大,是不含 Mg 粉时的 2.4 倍,这是因为当 Mg 粉质

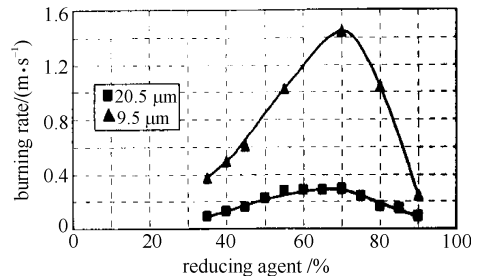


Fig. 3 Berger's experimental results about rules between reducing agent particle size and reaction rate

图 3 Berger 关于反应速度随可燃剂粒径变化规律的实验结果

表 3 四配方的光辐射强度

No.	irradiance intensity/(W · sr ⁻¹)	
	pole	pellet
1	716	8 638
2	927	8 311
3	527	8 006
4	404	3 257

量分数过高时,表面能使 Mg 粉团聚,通过机械混合的方法不能打开,加上药柱结构的约束,Mg 粉质量分数过高时辐射强度反而下降。对于药粒,Mg 粉质量分数为 50% 时辐射强度是不含 Mg 粉时的 2.55 倍,质量分数为 66% 时是 2.65 倍,因为结构松散,Mg 粉与空气接触面大,所以含 Mg 粉越多辐射强度越高。

2.3 光谱

燃烧火焰的辐射光谱由 EPP2000 光谱仪测量。由于采用磷酸盐钽玻璃作为出光实验的增益介质,而它的常用泵浦带中心波长是 583,746,802 nm,所以我们主要关心雾化 Mg 粉对这 3 个波长附近光辐射强度的影响^[10]。

分别对燃烧光谱中(583±10) nm,(746±10) nm,(802±10) nm 的光谱范围作积分,得到局域光辐射强度占总辐射强度的比例,图 4 是光谱积分随 Mg 粉质量分数的变化规律。纵坐标为泵浦带内光辐射强度占总辐射强度的比例,该值越大说明烟火药燃烧发出的选择性辐射占总辐射的比例越大,连续辐射占比例越小,说明配方的光谱效率越高。对于药柱,由图 4(a)可见加入 Mg 粉光谱效率有所提高。这是 Mg 粉使燃烧完全,放出更多热量,从而激励了更多碱金属原子发出原子光谱所致。对于药粒,由图 4(b)中 2[#] 配方光谱效率最高,其次是 4[#] 配方,最差的是 1[#] 配方。其变化规律不同于药柱是因为药粒燃烧时大量利用了空气中的氧,这时生成的 MgO 离燃烧中心较远,对激发原子辐射的贡献较小,所以 Mg 质量分数过高时,药粒的光谱效率很低。实验结果显示,含 50% Mg 粉的药剂光谱效率较高,若要得到精确的最佳比例,需要在 50% 附近作更多的配比实验。

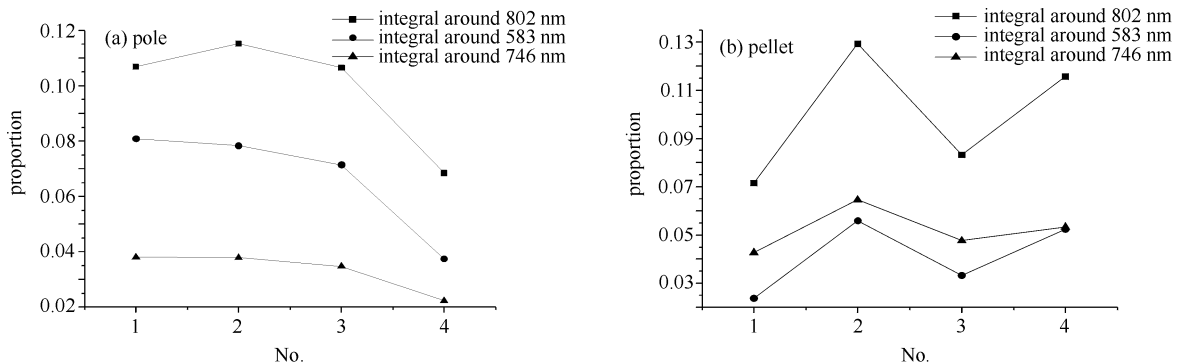


Fig. 4 Relation between spectrum integral and mass fraction of Mg

图 4 光谱积分与 Mg 粉质量分数关系

3 出光实验

烟火泵浦源配方研究的最终目的是提高激光器的效率。前期工作中^[7],泵浦 $\phi 8 \times 100$ mm 的 Nd 玻璃棒得到 29 mJ 的激光,本文在已出激光配方基础上,将可燃剂中 50% 的 Al-Mg 合金粉用雾化 Mg 粉代替。以这种新的泵浦源进行出光实验,在药剂用量、光腔参数等都不变的情况下,得到 147.8 mJ 激光,发光时间约为 56 ms,示波器记录的激光波形如图 5 所示。

4 结论

烟火泵浦激光器的关键在于安全高效的泵浦源。为了提高现有泵浦源的光泵浦效率,本论文改进了它的化学配方。实验证明雾化 Mg 粉替代 Al-Mg 粉作可燃剂时,药柱和药粒的燃速及光强都大有提高,光谱效率也略有提高。泵浦源燃速提高的主要原因是:质量燃速与反应层表面积成正比,可燃剂粒径减小反应层表面积增大,从而燃速提高。光强和光谱效率的提高都与总反应燃烧热的增加有关。由此得出结论:在可燃剂性能相似的情况下,减小粒径可以改善泵浦源多方面性能。以改进后的泵浦源进行出光实验,激光能量由 29 mJ 提高到 147.8 mJ,说明雾化 Mg 粉的加入提高了烟火泵浦激光器的效率。

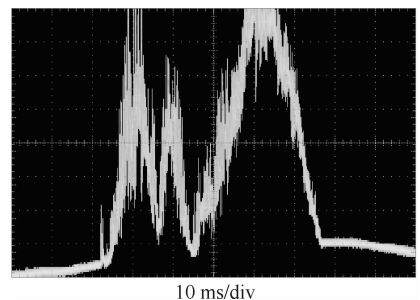


Fig. 5 Waveform achieved by new pump source

图 5 新泵浦源得到的激光波形

参考文献:

- [1] Kaminskii A A, Bagayev S N, Ueda K, et al. 5.5 J pyrotechnically pumped Nd³⁺:Y₃Al₅O₁₂ ceramic laser[J]. *Laser Phys Lett*, 2006, **3**(3): 124-128.
- [2] Andrew K. US Navy reveals laser concepts[N/OL]. *Jane's Defense Weekly*, 2003-06-27. http://www2.janes.com/docs/jdw/special_reports.shtml.
- [3] Pencikowski P, Csik P. A long-range synthetic vision system combining a pyrotechnic-pumped laser and range-gated camera[C]//IEEE Proceedings of 1996 Aerospace Applications Conference. 1996:97-102.
- [4] Cobbett J A, Cha S S. Radiative thermal loading of pyrotechnical energy pumping on phosphate laser glass[J]. *Experimental Heat Transfer*, 1997, **10**:315-328.
- [5] 朱长星. 用于激光泵浦源的高能含能材料研究[D]. 南京:南京理工大学,2005. (Zhu C X. Study of high-octane material as laser pumping source. Nanjing: Nanjing University of Science and Technology, 2005)
- [6] 项汛. 用于固体激光器泵浦源的化学闪光灯研究[D]. 南京:南京理工大学,2006. (Xiang X. Study on chemical flashlamps as pump source of solid state laser. Nanjing: Nanjing University of Science and Technology, 2006)
- [7] 肖楠, 姜宗福, 华为红, 等. 烟火泵浦玻璃激光器出光实验研究[J]. *强激光与粒子束*, 2008, **20**(1): 17-21. (Xiao N, Jiang Z F, Hua W H, et al. Output experiment of pyrotechnic pumping Nd glass laser. *High Power Laser and Particle Beams*, 2008, **20**(1): 17-21)
- [8] 洪广言. 无机固体化学[M]. 北京:科学出版社,2002. (Hong G Y. Inorganic solid chemistry. Beijing: Science Press,2002)
- [9] Berger B. Parameters influencing the pyrotechnic reaction[J]. *Propellants Explosives Pyrotechnics*, 2005, **30**(1): 27-35.
- [10] 肖楠, 吴文健, 姜宗福. 烟火泵浦激光器泵浦材料发光光谱研究[J]. *火工品*, 2006, (4): 4-8. (Xiao N, Wu W J, Jiang Z F. An investigation on pumping material's emission spectrum of pyrotechnic pumped Laser. *Initiators and Pyrotechnics*, 2006, (4): 4-8)

Effects of pulverized Mg powders on pyrotechnic pumping source

XIAO Nan, JIANG Zong-fu, HUA Wei-hong, YUAN Sheng-fu
(College of Optoelectric Science and Engineering, National University
of Defense Technology, Changsha 410073, China)

Abstract: In order to increase the pumping efficiency of pyrotechnically pumped laser, a method was presented to increase the burning rate and improve the irradiance ability of pyrotechnic agent. The new compositions were designed to replace Al-Mg alloy powders by pulverized Mg powders partially. When mass ratio between Mg and Al-Mg was 1 : 1, 2.1 times burning rate and 2.4 times radiant intensity were achieved for poles, 2.4 times burning rate and 2.55 times radiant intensity were achieved for pellets, and the spectrum efficiency of poles and pellets were improved ratherish. A model was built to analyze burning rate after detonation. Calculational results according to the model were that, 2.3 times burning rate than that of Al-Mg powder as the reducing agent was achieved when mass fraction of Mg was 50%, and 3.6 times burning rate was achieved when 100%. The experimental results were 2.4 times and 3.8 times respectively. The experimental results accord with to the calculation on the whole. With the new pump source, laser energy increases from 29 mJ to 147.8 mJ.

Key words: Optical pump source; Pyrotechnic powder; Particle size; Burning rate; Laser