

USED CARS测量乙炔/空气火焰的温度分布*

赵建荣 李春金

(中科院力学所, 北京, 100080)

摘要: 本文报道了用USED CARS方法测量乙炔/空气预混火焰的温度分布的结果。给出氮的CARS谱的理论计算曲线。对用CARS方法测量浓度的问题进行了讨论。

Measurement of temperature distribution in a flame of C_2H_2 /air using USED CARS

Zhao Jianrong, Li Chunjin

(Institute of Mechanics, Academia Sinica)

Abstract: This paper reports that USED CARS has been used to get the temperature distribution in a flame of premixed C_2H_2 /air, and provides the N_2 CARS spectra. The problem of concentration measurement by CARS has been discussed too.

一、引言

由于相干反斯托克斯拉曼光谱(CARS)输出信号的干涉特性、抗干扰能力和高强度,已被广泛研究并测量了多种实际发动机工作过程中的温度及燃烧产物的浓度^[1]。对实际应用而言,由于早期的窄带CARS受扫描时间限制,不能给出时间分辨的测量结果,因而发展了宽带CARS。用多通道光谱分析仪可以在一个脉冲期间(一般约为15ns)获取需要的全部信息。为了提高测量的空间分辨率,人们由简易的共线CARS发展到更常用的交叉CARS(平面或折叠BOXCARS)。交叉CARS虽然大大提高了空间分辨率,但它对光路的准直要求十分苛刻,而信号又较弱,轻微的振动或密度不均匀导致光路偏移会使信号消失或难以捕捉。因此,USED CARS便应运而生(非稳腔空间增强探测CARS技术)。在1984年Eckbreth^[2]提出这个名称并进行了实际测量以前,Marko等^[3]就提出了这种相位匹配技术并做了相应的工作。国内尚未见这类文章发表。本文即用USED CARS测量了乙炔/空气预混火焰的温度分布并对CARS测量浓度中的问题提出一些看法。

二、USED CARS 简介

USED CARS (Unstable-resonator Spatially Enhanced Detection Coherent

*国家自然科学基金资助项目。

Anti-Stokes Raman Spectroscopy) 是CARS的非稳腔空间增强探测技术。它利用了非稳

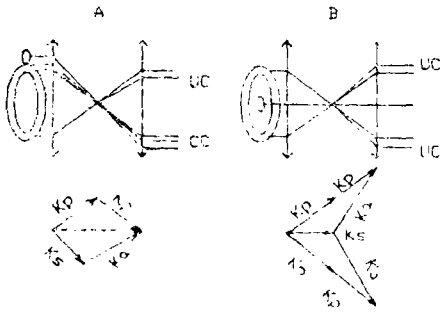


Fig.1 USED CARS phase-matching diagram

腔YAG激光器输出的环状模式特性,构成双光束三维相位匹配光路,可以认为这是BOXCARS的一种转动退化形式。它有二种实用布局:1. Stokes光束(染料激光束)位于泵浦光束(YAG激光束)的外缘。2. Stokes光束位于泵浦光束的中心。如图1所示。波矢 $K_i = 2\pi n_i \omega_i$, 对通常气体而言,可忽略折射率随波长变化,取 $n_i = 1$; ω_p , ω_s 和 ω_c 分别为泵浦光束、Stokes光束和CARS光束的频率。

对图1A的结构,相位匹配条件为:

$$2k_p \cos \theta_p = k_s \cos \theta_s + k_c \cos \theta_c \quad (1)$$

$$k_s \sin \theta_s = k_c \sin \theta_c \quad (2)$$

对小角度入射有: $\theta_s \sim (k_s/k_c) \theta_c$ 和 $\theta_p \sim \sqrt{k_s/k_c} \cdot \theta_c$,一般地, $k_s > k_c > k_p$,故有 $\theta_s < \theta_p$ 。

对图1B的结构,相位匹配条件为:

$$2k_p \cos \theta_p = k_c \cos \theta_c \quad (3)$$

对小角度入射有 $\theta_s \sim \left(\frac{2k_p}{k_c}\right)^{1/2} \theta_p$, 故 $\theta_s > \theta_p$ 。

这里 θ_p , θ_s , θ_c 分别为泵浦光束、Stokes光束和CARS光束在测试区与水平线的夹角。

显然,对于三束光以严格的匹配角入射到作用区的BOXCARS而言,此方法的光路准直难度较小;而对于共线CARS来说,它的空间分辨率较高;所以USED CARS提供了足够的空间分辨率而又有较强的实用性。

三 理 论 简 述

CARS是包含四波混频的非线性光学现象。当频率为 ω_p 和 ω_s 的二束激光在介质中相互作用时,它们混频产生频率为 $2\omega_p - \omega_s$ 的相干光,即CARS光束。这种混频对所有样品都将出现,但是,只有当 $\omega_p - \omega_s$ 趋近介质拉曼频率时,CARS信号才大大增强,成为共振CARS信号。

激光辐射通过介质的第三级非线性电极化率 $\chi^{(3)}$ 与介质相互作用。产生的CARS信号功率可写成^[4]:

$$P_c \propto P_p^2 P_s |\chi^{(3)}|^2 \quad (4)$$

式中,下角 a , p 和 s 与前面含义相同。 $\chi^{(3)}$ 包括共振和非共振贡献

$$\chi^{(3)} = \chi^R + \chi^{NR} \quad (5)$$

上标R和NR分别表示共振和非共振。 χ^R 可由半经典或量子力学方法得到:

$$\chi^R = \frac{2Nc^4}{k\omega^4} \Delta_i \frac{d\sigma}{d\Omega} \left[\frac{\omega_i}{\omega_j^2 - (\omega_p - \omega_s)^2 - i\Gamma_j(\omega_p - \omega_s)} \right] \quad (6)$$

式中, N 为粒子数密度, ω_i 为介质的拉曼频率, Γ_i 是拉曼线宽, $d\sigma/d\Omega$ 是拉曼散射截面, Δ_i 是频率为 ω_i 的振-转跃迁的上下能级聚居数差。当 $\omega_i \rightarrow \omega_p - \omega_s$ 时, χ^R 变大。定义频率偏调为 $\Delta\omega = \omega_i - (\omega_p - \omega_s)$, 如果 $\Delta\omega/\omega_i \ll 1$, 并对所有接近 $\omega_p - \omega_s$ 的 ω_i 求和, 得到:

$$\chi^R = \sum_j \frac{K_j \Gamma_j}{2\Delta\omega_j - i\Gamma_j} \quad (7)$$

$$K_j = \frac{2Nc^4}{k\omega_s^4} \Delta_i \frac{d\sigma}{d\Omega} \Big|_{\Gamma_j} \Gamma_j^{-1} \quad (8)$$

对Q支拉曼散射截面为:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} \Big|_Q = \frac{\omega_s^4}{c^4 2M\omega_0} \left[\alpha^2 + \frac{7}{45} b_j^2 \rho^2 \right] (V+1) \quad (9)$$

M 为对比质量; ω_0 为分子振动角频率; b_j^2 为Placzek-Teller系数; α 和 ρ 分别为分子极化率的各向同性和各向异性部分的微分; V 为初始能级的振动量子数; c 为光速; $k = \frac{h}{2\pi}$, h 为普朗克常数。

以上是对严格单色光而言。实际上, 泵浦光有一定的线宽(约 $1 \sim 2 \text{cm}^{-1}$), 特别是对宽带CARS而言, Stokes光束带宽为 100cm^{-1} 左右, 因此需考虑卷积展宽影响。考虑到 $\Delta\omega_p \ll \Delta\omega_s$, 最后得到:

$$P_s(\omega_s) \sim P_p \int P_s(\omega_p - \delta) P_s(\omega_s - \delta) |\chi(\delta)|^2 d\delta \quad (10)$$

结合我们的仪器参数加上其它有关考虑, 我们计算了一个大气压力下的氮的CARS谱(有关计算问题将另文发表)用来拟合实验结果以判定温度和氮的浓度。图2为一大气压力下, 氮浓度为0.7时的几个温度下计算的氮的CARS谱。

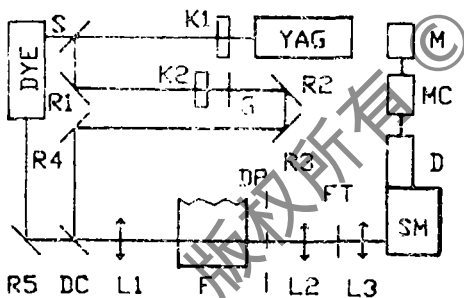


Fig.2 Schematic diagram for CARS experiment

四、实验综述

图3为实验装置图。相位匹配采用图1B的结构。非稳腔结构的YAG激光器输出环状光束, 脉宽约15ns, 通过倍频晶体 K_1 到达短波通滤光片S, 130mJ的532nm波长的绿光透过S用来泵浦染料激光器, 获得35mJ输出、中心波长为606.7nm的宽带Stokes光束。而到达S的 $1.06 \mu\text{m}$ 的基波则被反射通过第二个倍频晶体 K_2 获得所需的泵浦光束, 能量约为25mJ。剩下的 $1.06 \mu\text{m}$ 的激光则被隔热玻璃G吸收。 $R_1 \sim R_4$ 构成延时光路, 使泵浦光和Stokes光同时到达测试区。双色镜DC为一个特殊构造的 45° 全反镜, 它的中心有一未镀膜的椭圆面积。Stokes光穿过不镀膜部分得到直径为5mm的光束, 而环状的泵浦光束则被反射。这二束光被透镜 L_1 ($f = 30 \text{cm}$) 聚焦到火焰区。样品火焰F由原子分光光度计中的燃烧器提供, 为预混乙炔/压缩空气产生的片状火焰。光束穿过火焰区通过一环形光阑被与 L_1 共焦的透镜 L_2 发散成平行光束, CARS光穿过干涉滤光片FT被 L_3

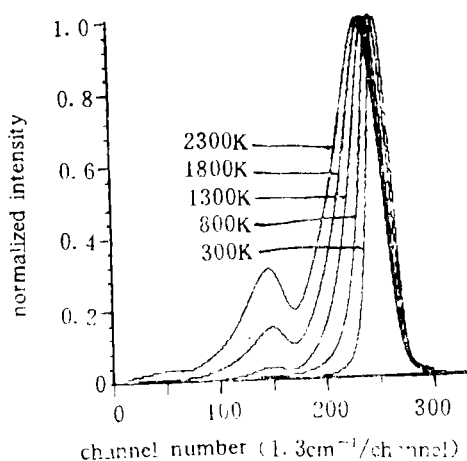


Fig.3 Temperature dependence of N_2 CARS spectrum from 300 to 2300 K in 500-K increments for one atmosphere, 70% N_2 concentration and 6 cm^{-1} slit width

波长为 16483cm^{-1} ，带宽 (FWHM) 为 101cm^{-1} 。图4为其输出线型的 40 次脉冲平均结果。实验表明，虽然每个脉冲输出有能量起伏，但线型基本不变。这个线型被用来归一 CARS 信号。光束行进方向上的空间分辨率是这样确定的：让激光掠过燃烧器的狭长喷口，测出室温空气中氮的 CARS 信号，在仅注入乙炔气体的情况下 (挤出作用区内的空气)，调整狭缝长度，直到氮的 CARS 信号刚好消失。这时的长度 (7.5mm) 定为纵向作用区的长度。在此区间泵浦束的最大直径为 0.4mm ，故这种实验布局的空间分辨率小于 1mm^3 。早期的共线 CARS^[5] 的纵向分辨率 $L=6\text{mm}$ ，($f=10\text{cm}$)，由于 $L\propto f^2$ ，所以 USED CARS 比共线 CARS 的空间分辨率提高了 7 倍多。

聚焦进入光谱仪 SM，由多通道光谱分析仪 (OSA) 的探测器 D 把得到的信号送入 OSA 控制器 MC 进行分析、贮存并在监视器 M 上实时显示。

如前所述，因为 CARS 信号在泵浦光环之外，所以环形光阑的设计使得能够透过 USED CARS 光束。而又最大限度地拦掉火焰的杂散光、泵浦光、Stokes 光和共线 CARS 信号，起到降低噪音干扰及提高空间分辨率的作用。事实上，由于衍射作用，环心还是有泵浦光强度分布的，它将与 Stokes 光产生共线 CARS 信号，从而降低 USED CARS 的纵向分辨率。我们的测试结果表明，共线 CARS 信号强度约为 USED CARS 信号强度的 15%。

染料激光器输出的 Stokes 光束中心

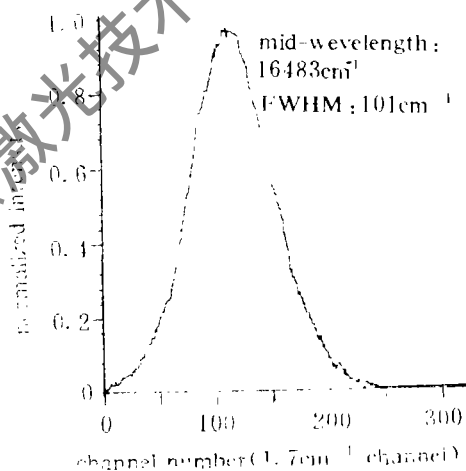


Fig.4 Spectrum profile of DYE laser (average over 40 laser shots)

五、结果和讨论

由于实验条件所限，我们只测试了喷嘴上方 $1.0\sim 4.6\text{cm}$ 的火焰中氮的 CARS 谱。把实验测得的 CARS 信号与理论计算的 CARS 线型拟合，得到火焰随高度的温度分布，结果如图 5 所示。图 6 为喷嘴上方 2cm 处氮的实验 CARS 谱 (40 次脉冲平均) 与 2275K 的理论谱的拟合情况，一致性是令人满意的，估计误差不大于 50K 。对于单脉冲信号，在 $V=1\rightarrow 0$ 的跃迁带中，噪音影响很小，但对 $V=2\rightarrow 1$ 的跃迁带，与理论谱比较，实验谱显示出起伏，可能是这

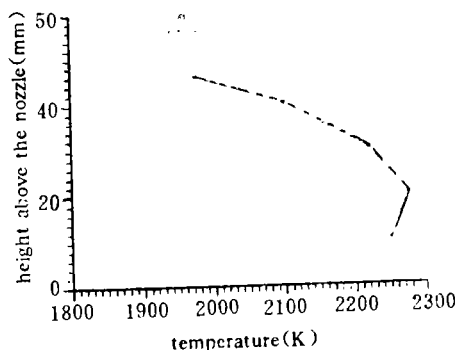


Fig.5 Temperature distribution for C_2H_2 /air flame

个第一热带信号较弱,因而信噪比较低的缘故。

理论计算中用到的仪器参数——狭缝宽度由300 K时不同狭缝宽度计算的空气中氮的CARS谱与实验得到的室温空气中氮的CARS谱相比较来确定。由图7可以看出,狭缝宽度取 $6cm^{-1}$ 是合适的。

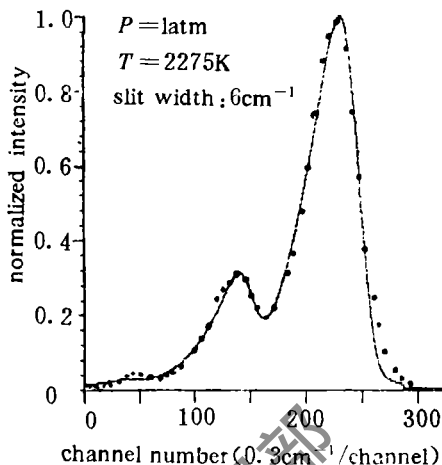


Fig.6 Comparison of theoretical CARS spectrum (curve) and CARS signature (dots, average over 40 shots) of N_2 in the flame

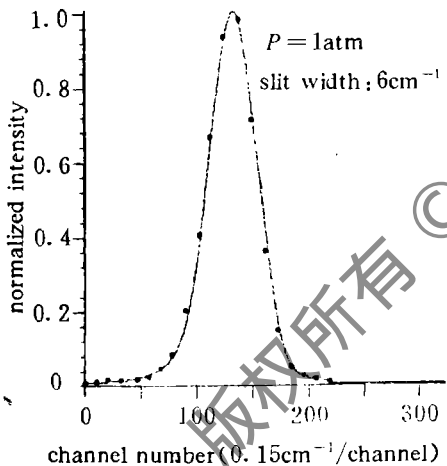


Fig.7 Comparison of theoretical CARS spectrum (curve) at 300 K and CARS signature (dots, average over 40 laser shots) in room air of N_2

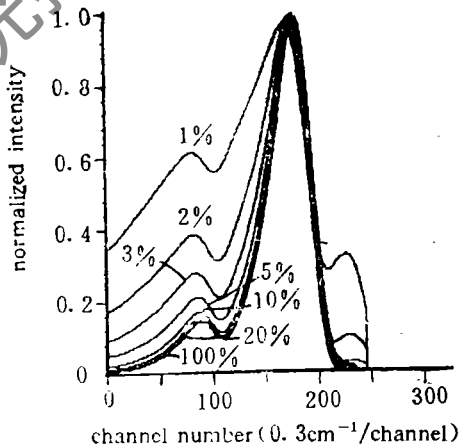


Fig.8 Concentration dependence of N_2 CARS spectrum at 1800 K

图8是1800K, 一个大气压力下几个不同氮的浓度的理论CARS谱。可以看出20%~100%浓度下归一化的光谱线型差别很小,即使在狭缝宽度取 $1cm^{-1}$ 的分辨率、转动带十分明显的情况下,在氮的浓度为48%~88%的计算范围内,也是无法从线型上区分浓度的。因此,根据化学反应平衡式:



可以算出完全燃烧时氮的浓度为72%。实际计算中取氮的浓度为70%是合理的,

可以看出,在高浓度范围内,CARS光谱线型对浓度是不敏感的,用线型来判定浓度只适用于低浓度范围,对氮来说为0.5%~20%。

由(4)式和(6)式可以看出,CARS信号强度与粒子数密度平方成正比,因此,信号强度是浓度的敏感因子,用信号强度来判定浓度是可靠的。遗憾的是CARS信号绝对强度的测量是十分困难的,通常的办法是将产生CARS信号后的泵浦束和Stokes束重新聚焦到充有预知气体池内获得信号,将该信号作为参照信号来与CARS信号比较。这样做一是使设备更加复杂;另外,由于通过燃烧气体的光束的畸变、折射及可能的振动影响,使光路失准直,从而相当大地降低了参照信号的可用性。

总之,USED CARS是较之BOXCARS和共线CARS更具实用意义的方法。CARS技术可以很好地应用于燃烧介质的温度和在一定浓度范围内各成分浓度的测量。在这个适当浓度范围之外,要想得到准确的浓度结果就需采用更复杂的设备和测试技巧。

参 考 文 献

- [1] Clark R J H, Hester R E. *Advances in non-linear Spectroscopy*. John Wiley & Sons, 1988
- [2] Eckbreth A C, Dobbs, G M, Stufflebeam J H *et al*. *Appl Phys*, 1984; 23: 1328
- [3] Marko K A, Rimai L. *Opt Lett*, 1979; 4: 211
Klick D, Marko K A, Rimai L. *Appl Opt*, 1981; 20: 1178
Davis L C, Marko K A, Rimai L. *Appl Opt*, 1981; 20: 1635
- [4] Hall R J. *Comb Flame*, 1979; 35: 47
- [5] 赵建荣, 李春金, 孙树兰. *中国激光*, 1990; 17: 163

*

*

*

作者简介: 赵建荣, 男, 1941年3月出生。副研究员。现从事相干反斯托克斯拉曼光谱(CARS)和退化四波混频(DFWM)及激光诱导发射光谱(LIES)的研究应用。

李春金, 女, 1938年5月出生。高级工程师。现从事相干反斯托克斯拉曼光谱(CARS)和退化四波混频(DFWM)及激光诱导发射光谱(LIES)的研究应用。

收稿日期: 1992年11月19日。 收到修改稿日期: 1993年2月8日。

• 书 讯 •

欢迎订购《国内外红外产品信息汇编》

《国内外红外产品信息汇编》广泛搜集了国内外的红外产品信息,分类编辑而成,本“汇编”收录了80年代以来中国、美国、英国、法国、日本、德国、前苏联、意大利、加拿大等15个国家的红外产品信息共630条,约30万字。其内容包括产品型号、名称、工作原理、结构、性能参数、应用范围、售价、厂商。本“汇编”内容丰富,信息量大,是目前国内该专业领域里唯一的一本产品信息汇编,经同行专家评审认为本“汇编”是一本难得的集产品信息、科技情报于一体的工具书。

本汇编为16开本,共200余页,现已出版发行,需订购的单位和个人,请与《激光技术》编辑部卢中尧同志联系(610041成都238信箱209分箱)。