

文章编号: 1001-2486 (2001) 02-0038-05

相干反斯托克斯喇曼光谱测量技术*

李麦亮, 赵永学, 耿辉, 周进, 王振国

(国防科技大学航天与材料工程学院, 湖南长沙 410073)

摘要: 根据燃烧诊断的需要, 研究了理论相干反斯托克斯喇曼光谱 (CARS) 与温度、浓度和压力的关系, 在液化石油气/空气预混火焰中进行了氮分子 CARS 测温实验。结果表明, CARS 是一种很有前途的发动机燃烧诊断技术。

关键词: CARS; 燃烧诊断; 温度测量

中图分类号: V436+.2 **文献标识码:** A

Research on Coherent Anti-stokes Raman Spectroscopy Measurement Technology

LI Mai-liang, ZHAO Yong-xue, GENG Hui, ZHOU Jin, WANG Zhen-guo

(College of Aerospace and Material Engineering, National Univ. of Defense Technology, Changsha 410073, China)

Abstract: In order to apply Coherent Anti-stokes Raman Spectroscopy (CARS) to combustion diagnosis, this paper studied correlation between theoretical CARS and temperature, correlation between theoretical CARS and concentration and correlation between theoretical CARS and pressure. Also, LPG/air flame temperature was measured with N_2 CARS.

Key words: CARS; combustion diagnosis; temperature measurement

由于高温、高压和强烈湍流的特点, 长期以来, 反映发动机燃烧过程特征的各种信息难以进行满意的测量, 而对于三组元发动机、冲压发动机、超燃发动机等的研制来说, 了解其燃烧过程又是设计的关键。为了开发一种对燃烧流场的温度分布、成分浓度分布以至压力分布进行测量的先进测量手段, 满足新一代航天运载工具发展和燃烧过程理论研究的需要, 这里对一种激光喇曼光谱的测量技术——相干反斯托克斯喇曼光谱 (简称 CARS) 测量进行了理论和实验研究。

1 CARS 理论

CARS 是一种四波混频效应, 即三束入射的满足一定频率和相位匹配要求的光波, 由于非线性效应而在介质中激发出第四束光波——CARS 信号。由经典的麦克斯韦方程组和物质方程出发, 可以得到非线性光学效应基本方程, 方程是以介质的非线性极化强度矢量对时间的二阶导数为驱动源的波动方程。引入各阶非线性极化率来表示介质本身的特性, 则 n 阶非线性极化强度矢量 1 分量表示为:

$$P_1^{(n)}(\omega_1 + \omega_2 + \dots + \omega_n) = \frac{1}{2} \sum_{l_1, l_2, \dots, l_n} \epsilon_0 \chi_{l_1 l_2 \dots l_n}^{(n)}(-\omega_{n+1}, \omega_1, \omega_2, \dots, \omega_n) E_{1l_1} E_{2l_2} \dots E_{nl_n} e^{-i[(\omega_1 + \omega_2 + \dots + \omega_n)t - (k_1 + k_2 + \dots + k_n)z]} + c.c. \quad (1)$$

其中 $\chi_{l_1 l_2 \dots l_n}^{(n)}$ 是 n 阶非线性极化率张量 $\chi^{(n)}$ 的一个张量元。CARS 信号仍然属于弱信号的范围, 因此在求解 CARS 信号强度的过程中采取小信号假设, 不考虑入射光波的强度变化, 那么, 对应于 CARS 信号的宏观非线性极化强度矢量的 i 分量可以表示为:

$$P_i^{(3)}(\omega_4, z, t) = \frac{1}{2} \epsilon_0 \chi_{ijk}^{(3)} E_1(z) E_2^*(z) E_3(z) e^{-i[\omega_1 - \omega_2 + \omega_3)t - (k_1 - k_2 + k_3)z]} + c.c. \quad (2)$$

上标 * 表示共轭。将上式代入非线性光学效应基本方程, 并认为 E 为慢变化量, 忽略其二阶微商,

* 收稿日期: 2000-08-30

作者简介: 李麦亮, (1971-), 男, 博士生。

可得：

$$\frac{d}{dz}E_{4i}(z) = i\frac{\omega_4}{2}\sqrt{\frac{\mu}{\epsilon_4}}\epsilon_0\chi_{ijkl}^{(3)}E_1(z)E_{2k}^*(z)E_3(z)e^{-\kappa(k_4-k_1+k_2-k_3)z} \quad (3)$$

在长度为 L 的作用区域上积分，可以得到 E_{4i} 和它的共轭，利用平面光强表达式，便得到 CARS 光强表达式为：

$$I_4 = \frac{1}{2}\sqrt{\frac{\epsilon_4}{\mu}}E_{4i}(L)E_{4i}^*(L) = \frac{\mu^2\omega_4^2}{n_1n_2n_3n_4}|\chi_{ijkl}^{(3)}|^2I_1I_2I_3L^2\frac{\sin^2\left(\frac{\Delta kL}{2}\right)}{\left(\frac{\Delta kL}{2}\right)^2} \quad (4)$$

式中， n_1 、 n_2 、 n_3 和 n_4 分别为三束入射光和 CARS 光在介质中的折射率， Δk 为波矢失配。如果将介质考虑为可以由薛定谔方程描述的粒子系统，则可推导出三阶非线性极化率为^[1]

$$\chi_{CARS}^{(3)} = \frac{8\pi^2\epsilon_0c^4N\Delta_j}{h\omega_j^4(\omega_j - \omega_1 + \omega_2 - i\Gamma_j)}\left(\frac{\partial\sigma}{\partial\Omega}\right)_j \quad (5)$$

其中， Δ_j 为混频过程中喇曼跃迁上下能级间的粒子数密度差， ω_j 为跃迁频率， $\left(\frac{\partial\sigma}{\partial\Omega}\right)_j$ 为喇曼散射截面^[2]， Γ_j 为线宽因子。

至此，CARS 光强表达式中的各项均为可以测量和计算的量，并且由表达式也可看出，CARS 强度与跃迁能级的粒子数密度（服从玻尔兹曼分布）有关，因而也与温度、浓度等有关。

2 理论 CARS 光谱

为了研究 CARS 光谱与温度、浓度和压力的关系，对 CARS 光谱进行了仿真计算，计算时考虑了自然展宽、泵浦激光线宽和仪器函数等^[3 4 5]。图 1 是常压下， $T = 1800\text{ K}$ 时氮分子 CARS 理论光谱图。采用孤立线模型（isolated line model）考虑自然展宽，泵浦线宽设为 1 cm^{-1} ，仪器函数在采用下文将要介绍的实验研究所用光路上实测，测量的条件是单色仪焦距 500 mm ，狭缝宽度 $50\text{ }\mu\text{m}$ ，长 12 m 、 $200\text{ }\mu\text{m}$ 芯径的光纤将 He-Ne 激光导向狭缝。由于 He-Ne 激光的线宽一般小于 10^{-3} cm^{-1} ，这里认为 He-Ne 激光为单色光。

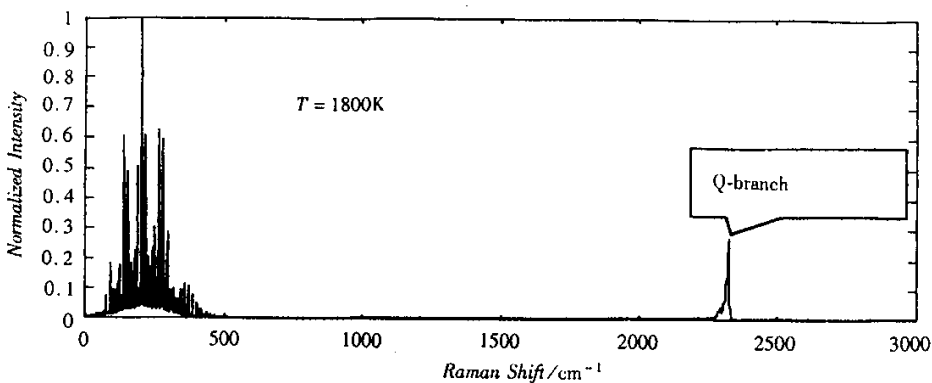


图 1 氮分子理论 CARS 光谱

Fig.1 Theoretical CARS of nitrogen

利用 CARS 仿真程序，研究了温度、浓度与氮分子 Q 支 CARS 光谱的关系，如图 2、图 3 和图 4 所示。图 2 中沿箭头所指方向，温度从 300 K 变化到 2400 K ，间隔 300 K 。图 4 中沿箭头所指方向，压力从 $1 \times 10^5\text{ Pa}$ 变化到 $30 \times 10^5\text{ Pa}$ ，第二条光谱对应 $5 \times 10^5\text{ Pa}$ ，再往上间隔为 $5 \times 10^5\text{ Pa}$ 。

由图 2 和图 3 知，在氮的摩尔浓度大于 40% 时，光谱的线型与温度有一一对应关系。这是利用光谱线型拟合进行温度测量的直接依据，由图 2 还可以看到，第一热带（左侧）峰值相对于基带（右侧）峰值的强度比随温度升高而增大，因此利用峰值强度比或共振谱积分面积比，也可以确定温度。

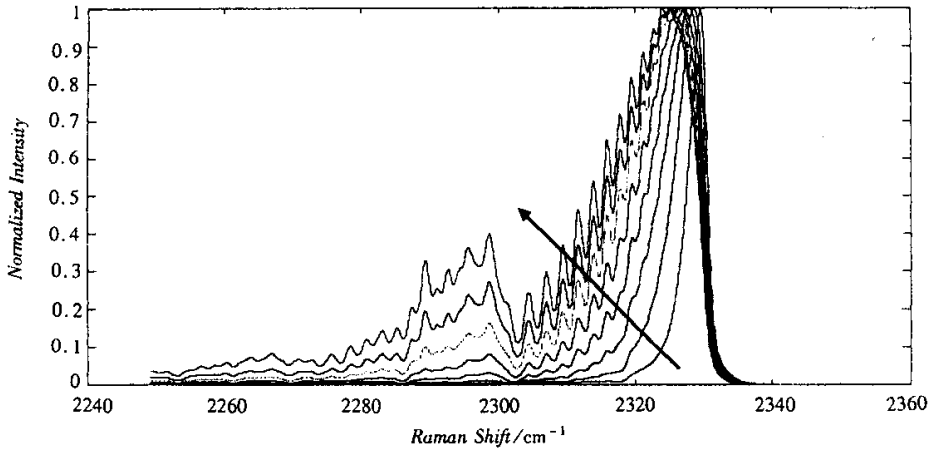


图2 纯氮气在不同温度下的理论 Q 支 CARS 光谱

Fig.2 Theoretical Q-branch CARS of pure nitrogen at different temperature

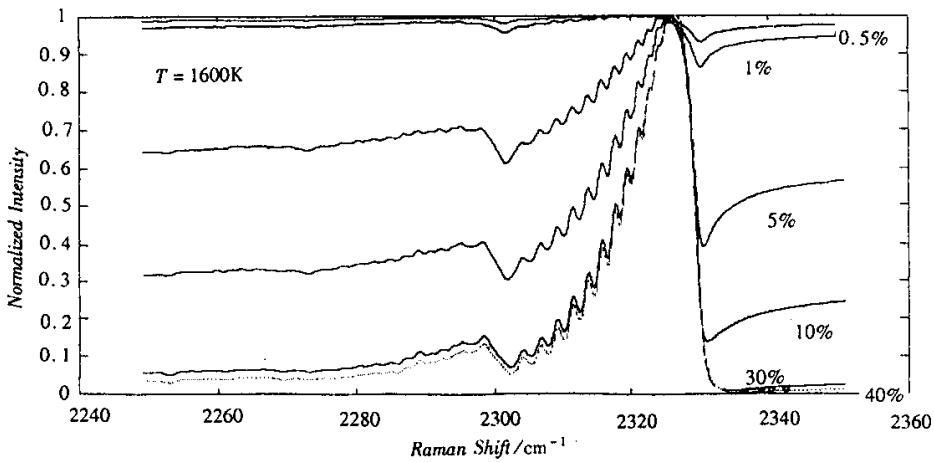


图3 不同摩尔浓度条件下的氮 Q 支理论 CARS 光谱线型比较

Fig.3 Comparison of theoretical N_2 CARS at different mole fraction

对浓度与光谱线型的研究表明, 温度一定时, 摩尔浓度在 0.5% 到 30% 之间的光谱线型与浓度值有对应关系, 因而也可以用线型拟合的方法确定浓度 (图 3)。当浓度低于 0.5% 时, 由于共振信号完全淹没于非共振信号中, CARS 无法对其进行测量; 当浓度大于 30% 时, 由于线型的变化非常小, 也难以得到准确结果。压力变化会通过影响分子间的碰撞而影响分子的能级分布, 从而改变光谱的线型。如图 4 所示, 当压力在一定的范围内变化时, 它对光谱线型的影响也非常明显。这表明, 在一定的条件下, 也可以直接用光谱测量某一微域的压力, 这对于研究火箭发动机不稳定燃烧非常有意义。

3 氮分子 CARS 光谱测温

在对光谱进行了理论研究的基础上, 结合现有的实验条件, 利用氮分子 Q 支 CARS 光谱测量了液化石油气与空气平面预混火焰的温度, 采用 USED CARS 相位匹配方式。实验系统如图 5 所示。Nd:YAG 激光器 (脉冲宽度为 2.5 ns) 发出的激光由分束镜分为两束, 其中一束用来泵浦染料激光器, 另一束光由环形镜片反射为环形光束。染料激光器发出的染料激光束位于环形光束的中心, 经透镜聚焦后射向测量对象。产生的信号光经过双色镜和滤波片的处理后被送入光谱仪。在光谱仪的出口, IC-CD 拍摄光谱并将其数字化, 而后送入计算机。拍摄到的光谱经过与理论光谱拟合或进行其它的处理,

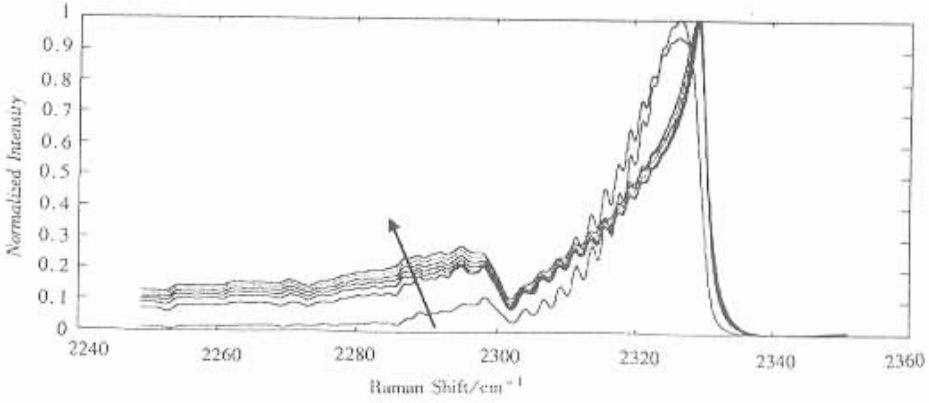


图 4 不同压力下的氮 Q 支 CARS 光谱, T = 1600K
 Fig.4 Theoretical N₂ Q-branch CARS at different pressure

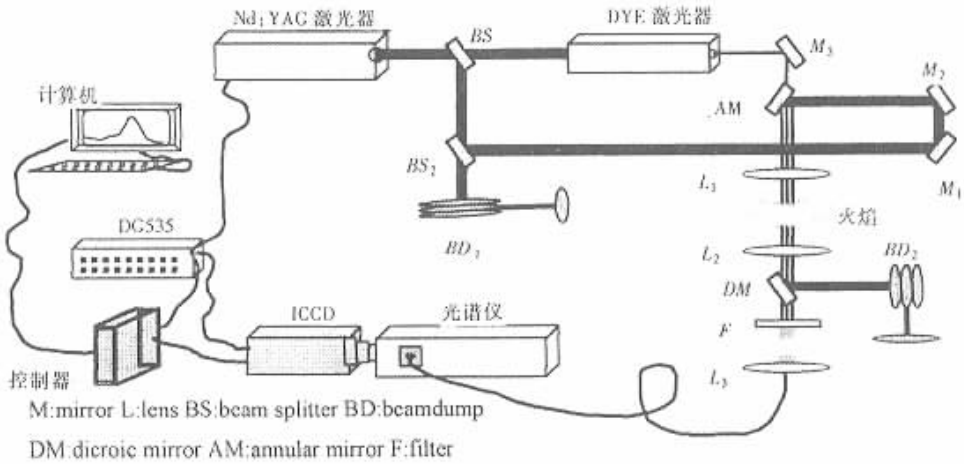


图 5 USED CARS 实验测量系统
 Fig.5 USED CARS experimental setup

便可以确定温度。

利用上图所示实验系统，对液化石油气和空气的预混火焰温度进行了测量。图 6 为测量所得光谱示例，图 7 为对应的拟合结果，图 8 是光谱测量结果与热电偶测量结果比较。

实验表明，CARS 测温具有实时、不干扰流场的特点和对测量对象要求低等优点，不过从图 7 也可看出，拟合的精度还有待提高。大量实验结果显示，实验光谱第一热带的峰值位置比理论位置靠近基带约 0.13 nm。分析认为，这主要是由于 ICCD 的标定引起的，标定时使用的线光源为汞灯，在 473 nm 附近没有可供标定的谱线，因此，使用了 ICCD 提供的高度自动化的标定方法，可以用任意两条谱线进行全波段的标定，当然也由此带来了误差，因为不同的波段波长与 ICCD 像素的对应关系并不是线性的。为此，已经购买了能提供更多谱线的线光源，可望在以后的实验中验证和解决这一问题。拟合结果不准确是图 8 所示结果的误差源之一，另外一个造成光谱测量结果与热电偶测量结果不能重合的因素是由于热电偶测量的不准确。由于热电偶会干扰流场，并由于辐射、传热等而使测温结果偏低。由于液化石油气的化学成分复杂，对它与空气的预混火焰的理论温度难以进行准确计算，无法用计算来证明热电偶的测量结果的准确性，但考虑到它是一种成熟的测温方法，在稳定温度场内，误差通常为几 K 到几十 K，这里便以热电偶的测量结果为基准。那么，光谱测量的相对误差为 5% 到 8% 以内，误差源除了标定不准确外，还有冷热信号叠加造成的信号线型畸变。

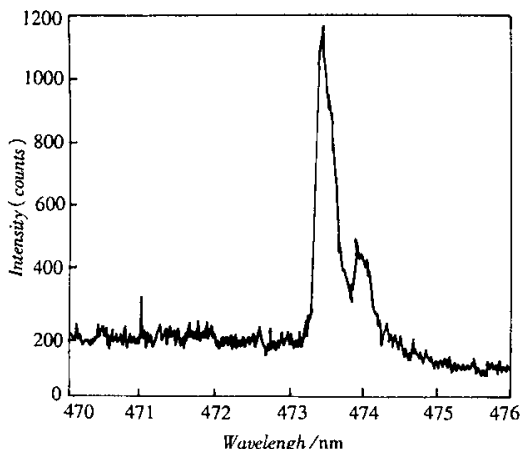


图 6 氮 CARS 实验光谱, 叠加了 120 个脉冲

Fig.6 N₂ CARS spectra taken in LPG/air flame, accumulated 120 pulses

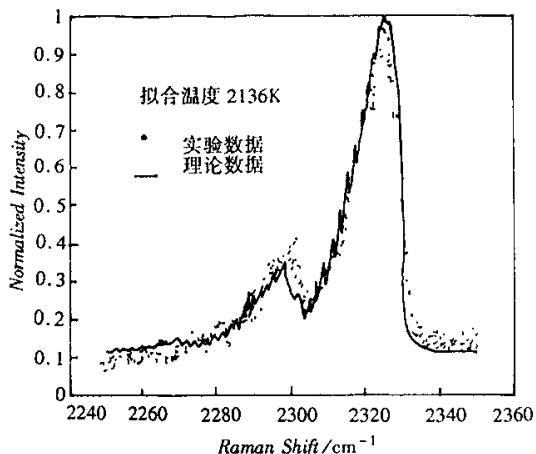


图 7 氮分子理论 CARS 光谱

Fig.7 Comparison of theoretical and experimental CARS spectra in fig. 6

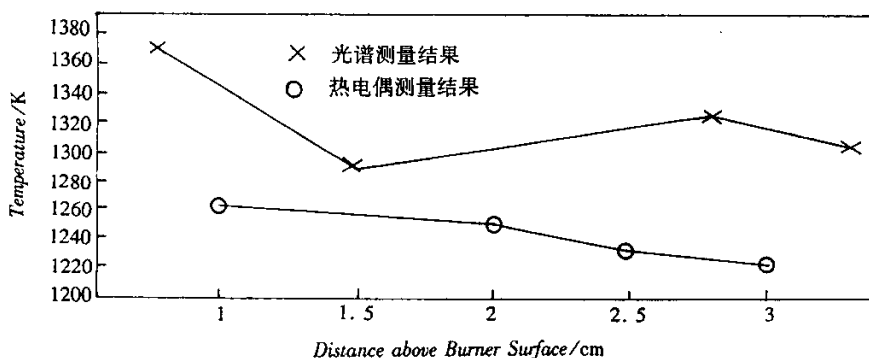


图 8 在火焰不同位置热电偶与光谱测温结果比较 (空气与液化石油气体积比为 43.7)

Fig.8 Comparison of results measured by thermal electric couple and CARS at different point in flame (Volume ratio of air to LPG is 43.7)

以上的测量是在专门设计的平面火焰中进行的,在这样的燃烧流场内,可以用叠加脉冲的方式提高信噪比,正如实验中用到的方法一样。但是在火箭发动机燃烧这样的湍流剧烈的流场内,叠加脉冲会造成很大的误差。理论研究表明,常温下的单脉冲 CARS 信号的绝对强度比高温下的单脉冲 CARS 强度要高成百上千倍。以 2000 K 左右与常温的比较为例,实验结果显示,相差在三百倍以上。这样,叠加会造成线型严重畸变而使拟合结果不准确。所以在不稳定场内,应该使用单脉冲测量,这正是 CARS 研究的前沿。

4 结论

CARS 测量是一种实时、非接触因而不干扰流场的测量技术,理论上可以提供纳秒级的时间分辨率和微米级的空间分辨率及很高的精度,适合用于火箭发动机燃烧的恶劣测量环境。当然,还需要大量的实验工作来提高其实际测量精度。本文只是 CARS 测量技术研究的阶段性结果;CARS 可以对发动机研究所关心的温度、成分浓度甚至压力进行测量;要满足实际测量的要求,还需要提高测量的精度,发展单脉冲测量技术。

致谢:感谢中国科学院力学研究所的俞刚研究员、赵建荣研究员和杨仕润博士提供的指导和帮助。
(下转第 56 页)

(上接第 42 页)

参考文献：

- [1] Eckbreth A.C. Laser Diagnostics for Combustion Temperature and Species [J]. Abacus , Kent , UK , 1998 : 162-300
- [2] 解伯民、刘达伟. 探测气体平衡和非平衡态的相干反斯托克斯喇曼散射技术 [J]. 力学进展 , 12 (3) , 1982 : 255-264
- [3] 李麦亮. 相干反斯托克斯喇曼光谱测量技术研究 [硕士学位论文][D]. 2000.
- [4] 杨仕润 , CARS 在超音速燃烧中的应用 [博士学位论文][D]. 1998.
- [5] Zhao J. R. , Yang S. R. etc. CARS Measurements in a Hydrogen/Air Supersonic Combuster [C]. AIAA 97-0122.

