

一种高压火焰燃烧检测的新技术——异步光学取样法

姜亚南* Galen B. King, Normand M. Laurendeau

(普渡大学机械工程系)

Ronald J. Kneisler, Fred E. Lytle

(普渡大学化学系)

A novel technique for probing high pressure combustion flame——ASOPS

Jiang Yanan, Galen B. King, Normand M. Laurendeau

(Department of Mechanical Engineering, Purdue University, USA)

Ronald J. Kneisler, Fred E. Lytle

(Department of Chemistry, Purdue University, USA)

Abstract: We report here the results from a new pump/probe spectrometer that employs asynchronous optical sampling (ASOPS) for potential use in combustion diagnostics. This novel laser probe would be used in quantitative measurement of various molecular groups produced in perturbed high pressure combustion flame.

1. 在通常的泵浦-探测激光光谱测量中,所用的泵浦与探测锁模激光器的锁模脉冲重复频率是相同的。因此需用一光学延迟装置来控制两束激光脉冲之间的相对延迟时间。同时还要采用某种机械或电光的斩波器,产生一振幅调制信号,以便于同步地交流检测^[1-3]。与之对比,新发展的 ASOPS 技术所使用的泵浦及探测激光脉冲的重复频率 $f_{\text{泵}}$ 、 $f_{\text{探}}$ 是略为不同的。它们之间的拍频为 $f_{\text{拍}}$ 。于是,泵浦和探测激光脉冲系列之间有一渐变的位相延迟。位相延迟量的变化周期为 $(f_{\text{拍}})^{-1}$,如图 1(a)所示。该图给出了在泵浦激光脉冲系列的泵浦下,样品处于激发态的粒子数密度随时间的变化(实线)。即泵浦脉冲后激发态粒子数密度的增加以及随后的荧光衰减。同时也表示出了探测激光脉冲在时间坐标上的相对位置(虚线)。每个探测脉冲相对于泵浦脉冲在时间上有一延迟。因此,每一个探测脉冲将在相对于泵浦脉冲之后一个延迟时间内,去取样探测该时刻的

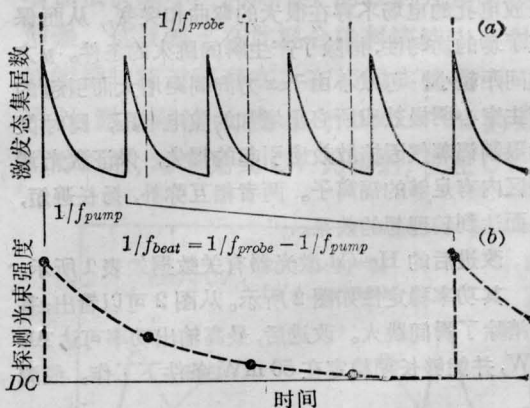


图 1 ASOPS 信号的原理

- (a) 激发态粒子数密度的变化;
- (b) 探测激光强度的变化

* 原清华大学。

激发态粒子数。这等效于以前测量仪器中所用的光学延迟装置。当累积的延迟时间恰好等于激光泵浦周期 $(f_{\text{泵}})^{-1}$ 时,这种取样过程将再次重复其自身。当泵浦和探测激光束同时通过待测样品时,样品激发态的产生和随后的衰减将对探测激光的强度产生调制,其调制频率恰好为系统的拍频 $f_{\text{拍}}$ 。因此,与以前的泵浦-探测技术相比,新的 ASOPS 技术不再需要对光束作附加的调制。而以拍频为参考频率实现信号的同步探测。图 1(b)给出了通过样品后的探测激光强度变化曲线。这是由于探测激光束上叠加了样品受激辐射的信号。该信号是待测样品中分子团的荧光衰减过程通过受激辐射在探测激光束上的直接反映。当然该信号是叠加在相当强的探测激光的直流背景上的。

一系列的实际激发态衰减过程,如图 1(a)所示,其实际测量时间为 $(f_{\text{泵}})^{-1}$ 。在时间坐标上被放大了,并转化为一等效的衰减过程,如图 1(b)所示,其等效测量时间为 $(f_{\text{拍}})^{-1}$ 。可见,在 ASOPS 技术中,待测样品的激发态衰减过程在时间坐标上被放大了 $(f_{\text{泵}}/f_{\text{拍}})$ 倍。可见,用 ASOPS 技术可以在示波器上直接地观测 ns(10^{-9} s)量级的激发态衰减过程。

2. 图 2 给出了 ASOPS 的基本仪器方框图。泵浦与探测激光束是选用 Spectra-physics 公司的 375 B 型染料激光器。在本实验中,泵浦和探测激光束的锁模脉冲重复频率约为 82 MHz。它们之间的拍频为 10 kHz,激光脉宽约为 10 ps。波长可调。用 Rhodamine 6G 作染料,调谐范围从 560~640 nm。在 800~900 mW 的泵浦功率下,在此调谐区的中间范围,染料激光的平均功率大于 250 mW。

从出射的泵浦和探测激光束中分别取出一微小的激光作为系统拍频的触发信号。具体说是用两个高频响应的光电二极管(EG&G 公司的 FND-100 型)来分别接收两激光束,输出的两路电信号再进入双路平衡混合器(Mini-Circuits 的 ZAD-8 型)。由此获得拍频输出信号^[4]。

当所研究的样品是溶液时,通常将该溶液置于转动的容器中,以消除高功率激光束通过溶液时的“热透镜”效应。用光学合束器,把泵浦和探测两束激光重合,然后用透镜聚焦于待测溶液内。从样品出射的光束通过收集透镜、窄带干涉滤光片,将泵浦及探测光束分离再将透过的探测光束收集在光电二极管上。

在目前的实验中,ASOPS 信号的检测是用数字式示波器(Hewlett-Packard 54100 A 型)。ASOPS 测量系统的自由测量时间区 Δt 的选择应与待测样

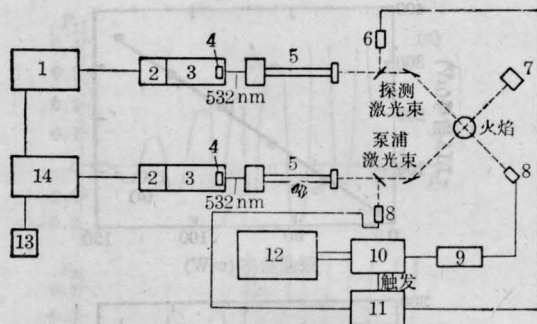


图 2 ASOPS 仪器示意方框图

1—主频合成器;2—锁模器;3—Nd:YAG 激光器;4—倍频器;5—同步泵浦的染料激光器;6—光电二极管;7—光束隔阂;8—光电二极管;9—交流放大器;10—脉冲信号平均器;11—双路平衡混合器;12—计算机;13—参考频率振荡器 10 MHz;14—从频合成器

品的衰减寿命 τ 相匹配。如认为在 3τ 时间后,泵浦脉冲所激发的激发态粒子数将衰减为零。则 3τ 与 Δt 的比值则代表了测量的占空率。在本实验中, Rhodamine B 的激发态寿命 $\tau=2.3\text{ns}$, 因此测量的占空率 $3\tau/\Delta t=56.6\%$ 。如增大 $f_{\text{拍}}$, 则单次取样周期内的总取样点数 N 和时间分辨率都将减小。

由于 Rhodamine B 的吸收和发射光谱是在可见光区,因此我们首先选用 Rhodamine B 溶液作样品。由此来作 ASOPS 技术在可见光谱区的可行性研究。从光电二极管所得到的探测光信号输入锁相放大器。以 $f_{\text{拍}}$ 为参考信号,用锁相放大器来提取 ASOPS 信号在 $f_{\text{拍}}$ 频率处的傅氏分量,即 LIA 信号。改变 Rhodamine B 溶液的浓度,从而得到不同的样品吸收率;改变探测光、泵浦光功率;完成一系列实验。实验表明 LIA 信号与样品的吸收率、探测光功率、泵浦光功率成良好的线性关系。如图 3 所示。该线性关系是与 Beer 定律所得到的结论是一致的^[6]。图 4 给出了 ASOPS 信号的实时全貌,这与图 1(b)中所预期的结论一致。在图 4 的时间坐标轴上,给出了实际时间坐标,激发态的实际衰减测量周期是 12.2ns ;而在等效时间坐标上,衰减过程的重复周期则是 $100\mu\text{s}$ 。由于在每一次激发态的实际衰减过程中,探测光脉冲上取样一点(如图 1(a))。而 8200 个不同延迟的取样点,等效地再现了整个衰减过程。激发态衰减过程从实际时间放大为等效时间。放大了

$$f_{\text{泵}}/f_{\text{拍}} = \frac{100 \mu\text{s}}{12.2 \text{ns}} = 8200 \text{ 倍。}$$

而在一个周期的衰减过程测量中,有 $N=8200$ 个测量点是有效的。

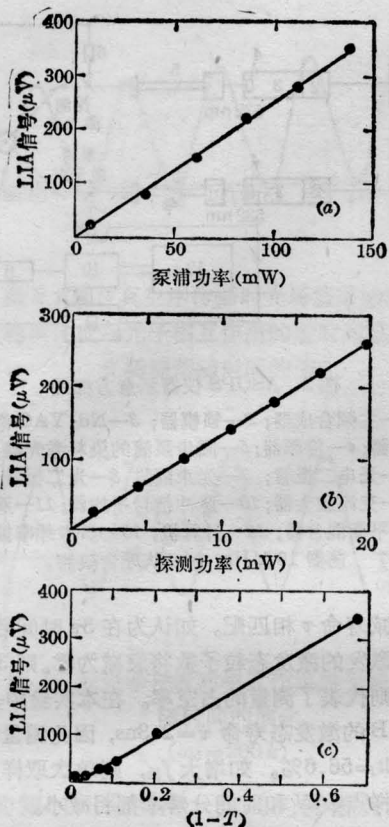


图3 ASOPS 信号随 (a) 泵浦激光功率; (b) 探测激光功率; (c) 样品吸收的变化

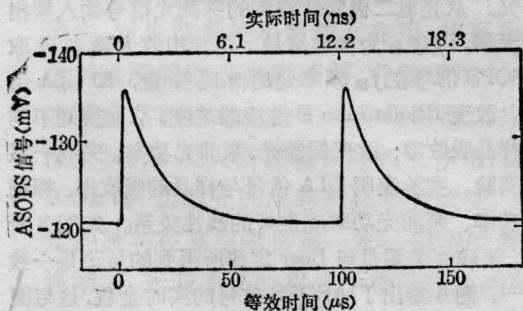


图4 ASOPS 的实时信号 (Rhodamine B)

近来, ASOPS 技术已进一步用于大气压下含有 Na 的 $\text{CH}_4/\text{O}_2/\text{Ar}$ 火焰样品的研究。将泵浦激光波长调整在钠的 D_2 线 ($\lambda_{D_2}=588.99 \text{ nm}$) 上。再用波长为 568.82 nm (或 λ_{D_2}) 的探测激光束造成火焰中的 Na 原子从 $3p^2P$ 态到 $4d^2D$ 态 (或基态) 的受激吸收 (或受激发射及吸收)。这样利用火焰中钠原子的双

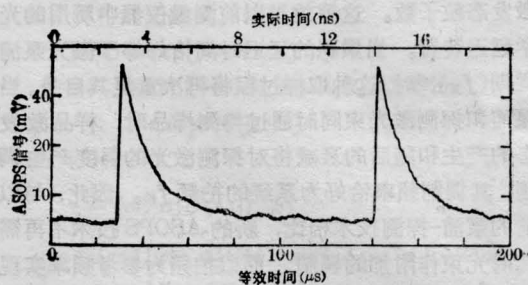


图5 在 $\text{CH}_4/\text{O}_2/\text{Ar}$ 加上 Na 的预混合火焰中 原子 Na $\lambda_{D_2}=589 \text{ nm}$ 的 ASOPS 实时信号

光子跃迁 (泵浦与探测), 我们可以将 ASOPS 技术在可见光谱区用于燃烧环境, 而无需更改测量设备。图 5 给出了探测激光波长为 λ_{D_2} 时, 在 $\text{CH}_4/\text{O}_2/\text{Ar} + \text{Na}$ 的火焰中的 ASOPS 信号。在实验中, 泵浦与探测激光的脉冲重复频率的差值为 $f_{\text{拍}} \approx 9 \text{ kHz}$ 。我们还完成了整个火焰中不同点的 Na 原子浓度的相对测量等实验 (见图 6)。

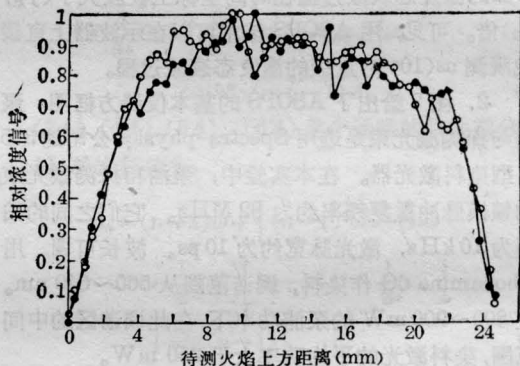


图6 火焰中 Na 原子浓度的相对测量 (用两种方法测量并对比)。

○—用 ASOPS 技术; ●—用激光感应荧光法

参 考 文 献

- 1 Blanchard G J, Wirth M J. *Ann. Chem.*, **58**, 532 (1986)
- 2 Quitevies E L et al. *Appl. Opt.*, **24**, 318(1985)
- 3 Andor L et al. *Rev. Sci. Instrum.*, **55**, 64(1984)
- 4 Alfano A J et al. *Rev. Sci. Instrum.*, **54**, 967(1983)
- 5 Elzinga P A. Asynchronous Optical Sampling, Thesis M S, Purdue University, West Lafayette., Indiana, December, 1986

(收稿日期: 1987年5月4日)