

文章编号: 0253-2239(2001)03-0348-04

激光诱导预分离荧光法窄带及宽带测温实验研究*

关小伟 刘晶儒 黄梅生 李真富 张振荣 刘建胜
(西北核技术研究所, 西安 710024)

摘要: 介绍了激光诱导预分离荧光法测温的原理及实验结果。利用可调谐 KrF 准分子激光器, 在常压甲烷-空气火焰内测得了 OH 自由基的系列荧光谱; 并对它们的谱线结构进行了分析; 给出了利用窄带激光和宽带激光两种不同激励条件下测量的温度值。通过选择适当的激励线及激光能量, 减去背景噪声等途径, 使两种方法的测量精度均高于 3%。

关键词: 激光诱导预分离荧光法; 可调谐 KrF 准分子激光器; 温度测量

中图分类号: TN249:TB942 文献标识码: A

激光诱导预分离荧光法(LIPF)是以激光技术、光谱技术、光电探测技术、数字和图像处理技术等为基础的一种综合性非接触测试技术。它可以用来测量燃烧场的分子密度、温度及浓度分布等参量, 对分析燃烧场的燃烧过程和提高燃烧效率具有非常重要的指导意义。因此近年来该方法在国外成为研究的热点之一^[1-3], 已广泛应用于敞开火焰、内燃机、发动机等燃烧场的测量诊断中。

温度是燃烧场中重要的燃烧参量之一。用热电偶测温时, 由于测量探头需置于燃烧场中, 因此会对燃烧本身带来干扰, 引起测量不准确。而且热电偶测温其时间和空间分辨率差, 不能准确测量燃烧场瞬时的温度分布。利用激光诱导预分离荧光法测法, 不但对火焰没有干扰, 而且时空分辨率高(时间分辨率达纳秒量级, 空间分辨率可达 100 μm), 加之荧光信号较强, 使二维甚至三维的温度场测量也成为可能。本实验以稳定的甲烷-空气火焰为研究对象, 分别利用窄带及宽带激光测量了燃烧火焰中 OH 基的系列荧光谱线, 通过谱线结构分析, 除利用窄带法测温外, 还提出并验证了利用宽带激光测温的可行性, 并对二者的优缺点进行了比较分析。

1 激光诱导预分离荧光法测温原理

激光诱导预分离荧光法的测温原理在某些文献上已有详细论述^[4], 因此在这里只进行简单说明。

根据统计热力学, 当气体分子的转动能级处于

热平衡时, 分子 AB 在量子态 i 的相对密度 n_i 与其所处能级 E_i 之间的关系应服从玻耳兹曼分布:

$$n_i = n \alpha (2j + 1) \exp(-E_i/kT), \quad (1)$$

式中 n 代表分子 AB 的总密度, k 为玻耳兹曼常数, j 代表总角动量, E_i 代表量子态 i 的能量。在激光诱导预分离荧光法中, 分子 AB 处于频率 ν_1 的激光激励, 从电子基态 i_1 激发到激发态 i^* , 发出荧光。荧光强度用光电探测器测量。忽略碰撞(在激光诱导预分离荧光法中, 由于分子在激发态的预分离速率非常高, 大部分分子根本来不及碰撞, 这种假设是合理的^[5]), 则荧光信号 S_1 正比于分子在量子态 i_1 的密度 n_1 。比例系数 P 包括吸收和散射的谱线强度。如果把激励激光调谐到另外一个频率 ν_2 , 那么在另一量子态 i_2 的相对密度 n_2 也可以通过荧光信号 S_2 确定。由于荧光信号的强度正比于相对密度, 因此测得的比率 $R = S_1/S_2$ 与温度 T 满足以下关系:

$$R = \frac{S_1}{S_2} = \frac{P_1 n_1}{P_2 n_2} = \frac{P_1 (2j_1 + 1)}{P_2 (2j_2 + 1)} \exp\left[\frac{E_2 - E_1}{kT}\right], \quad (2)$$

如果已知 E_i , j_i , P_i 和测量比率 R 的值, 则:

$$T = (E_2 - E_1) / \left[k \ln \left[\frac{P_2 (2j_2 + 1)}{P_1 (2j_1 + 1)} R \right] \right], \quad (3)$$

从原理上讲, 温度可以由任何两个不同量子态的密度值确定。但由(3)式不难推出:

$$\left| \frac{dR}{R} \right| = \frac{|E_2 - E_1|}{kT} \left| \frac{dT}{T} \right|, \quad (4)$$

这里 $|E_2 - E_1|/kT$ 项是测量灵敏度斜率。它表明如果两个低能态的能量差越大, 测量灵敏度越高。但是, 能量差增大, 意味着必须扩大转动角动量 J 的差

* 国家科委 863-416 主题资助项目。

收稿日期: 1999-05-17; 收到修改稿日期: 1999-12-24

值,即要把其中一支激发线选择为高 J 状态,而高 J 态的粒子数较少,荧光信号较弱,又会影响测量灵敏度。因此,选择合适的跃迁是必要的。同时,以上公式要求激光的功率密度与荧光信号满足线性条件,因此,选择合适的能量也是必要的。

2 实验系统

该实验装置如图 1 所示,它主要包括激励部分、光路部分和光电探测 3 部分。

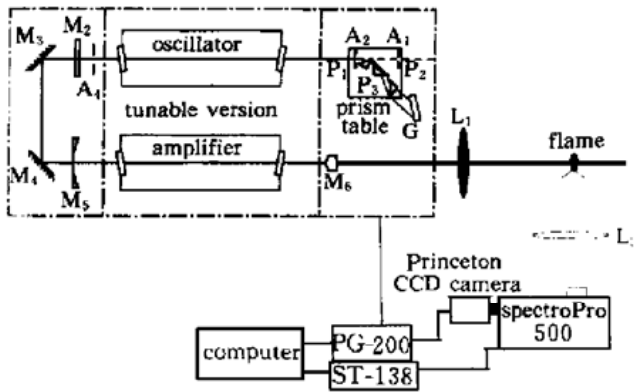


Fig. 1 Experimental setup

激励部分是 Compex150T KrF 准分子激光器,其工作模式为注入锁定方式。锁定时,放大级输出的是波长从 248.0 nm 到 248.8 nm 可连续调谐的窄带激光,它的带宽为 0.5 cm^{-1} ;未锁定时,放大级输出中心波长为 248.45 nm,并宽为 0.5 nm 左右的宽带激光。激光器最大能量为 400 mJ,实验中由于光路调节及传输衰减等原因,到达测量火焰的最大能量约 200 mJ~300 mJ。激光的脉宽为 20 ns 左右。窄带激光的锁定效率在 90% 以上。虽然 KrF 激光器的调谐范围很窄,但在这个范围内,燃烧的初始组分 O_2 、燃烧的中间产物 OH 和燃烧的最终产物 H_2O 都可以被激励^[5]。当激光为窄带时,调谐激光器的频率,使之和某一分子的某一激励线频率相同,产生单一分子单一态的荧光信号;当激光为宽带时,由于激光的能量很高,因此它可以同时把这三种分子激励到不同的高能态,产生各种荧光信号。实验发现,对宽带激励,利用高分辨率的光栅,其中的一些荧光信号是可以分辨出它是由哪种分子的哪种激励态激发的,这一点对瞬时温度测量非常重要。

光路系统中,透镜 L_1 是一组光学镜的组合,它的功能相当于一个焦距为 100 cm 的凸透镜。实验中火焰位于透镜 L_1 的焦点前 3 cm 左右(为了避免在焦点附近由于空气击穿而产生复杂的等离子体谱

线,对测量产生干扰)。透镜 L_2 是焦距为 15 cm 的短聚焦透镜,使用短焦距透镜可提高荧光信号的收集效率。实验中透镜 L_2 的物像之比为 1:1。

光电探测部分包括高灵敏度、高增益的紫外光电探测器 ICCD,光谱仪,数据采集与显示装置等。ICCD 采用门控开关的形式,实验中,一般定义开门时间为 100 ns,因而可以去掉大量的连续光干扰,从而大大提高信噪比;光谱仪包括三个不同扫描范围和分辨率的光栅,实验中通过改变光栅可以非常方便地改变荧光谱的记录范围和谱分辨率。

3 结果与分析

1) OH 谱。图 2 是激光共振线为 $Q_1(11)$ 时甲烷-空气火焰 OH 分子的散射谱线,光谱仪的分辨率约 0.1 nm,图 2(a)的中心波长为 288 nm,图 2(b)的中心波长为 325 nm,扫描范围 268 nm~345 nm。可以看出,OH 分子被激发到 $^2\Sigma^+, v' = 3, N' = 11$ 态后,有三个地方的散射最强,发出三个一组的散射谱线,中心波长分别为 273 nm、298 nm、330 nm。图中从上能态 $^2\Sigma^+, v' = 3, N' = 11$ 发出的单一的荧光谱线分别记为 $P_1(12)$ 、 $Q_1(11)$ 、 $R_1(10)$;三个散射最强的地方,分别对应于振动能级 $v' = 3$ 到 $v'' = 3$ (330 nm), $v' = 3$ 到 $v'' = 2$ (298 nm), $v' = 3$ 及到 $v'' = 1$ (275 nm) 的跃迁^[6]。

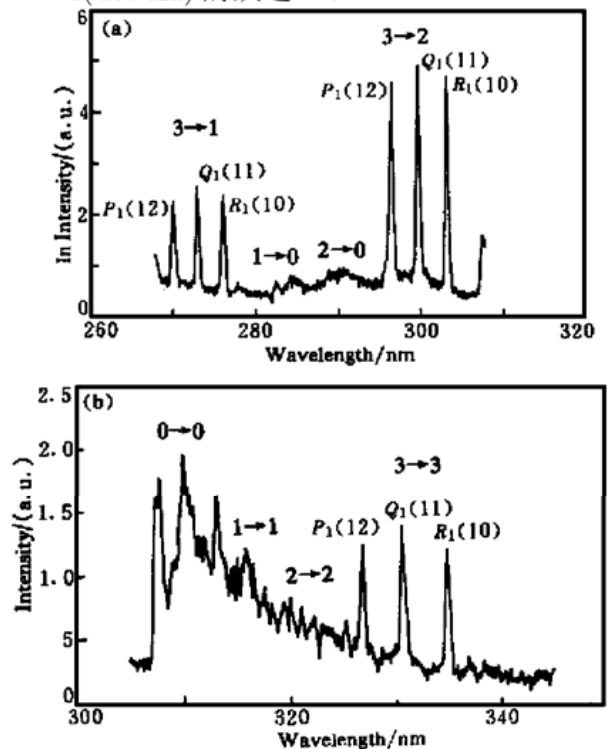


Fig. 2 OH dispersion spectrum (one). OH is excited on the $Q_1(11)$ line

在这些单一的强线间, 波长 280 nm~ 290 nm、305 nm~ 325 nm 的范围内, 还存在一些信号比较弱的散射。这些散射是 OH 分子 [$^2\Sigma^+$ 态] 一些较低的振动态($v' = 2, 1, 0$) 向下跃迁产生的荧光信号。产生这种跃迁的原因是由于碰撞使分子的振动能级发生转换 (VET), $v' = 3$ 态的粒子数分配到附近的 $v' = 2, 1, 0$ 态, 使它们的粒子数增加, 产生荧光信号。由于在低能态分子的预分离时间较长, 因此有更多的碰撞和粒子数在同一振动态下的转动能量转移, 所以它们的谱线要宽得多, 结构也更复杂。实验表明, OH 分子 $^2\Sigma^+, v' = 3 \rightarrow ^2\Pi, v'' = 2$ 跃迁的荧光信号强度大, 信噪比高, 特别适合温度测量。

图 3 是光谱仪的分辨率约为 0.015 nm 的情况下, OH 分子的荧光谱线, 图 3(a) 是激光波长调谐到 $Q_1(11)$ 线时 OH [$^2\Sigma^+, v' = 3 \rightarrow ^2\Pi, v'' = 2$] 的荧光谱线, 图 3(b) 是激光波长调谐到 $P_2(8)$ 线时 OH [$^2\Sigma^+, v' = 3 \rightarrow ^2\Pi, v'' = 2$] 的荧光谱线。实验结果表明, 它们的荧光信号和噪声相比, 噪声基本可以忽略不计。而且这两条激励线对应的下能态能量差 $\Delta E = 1051.49 \text{ cm}^{-1}$, 差值比较大, 因此非常适合以它们的荧光强度比为参量进行温度测量。同时由于它们的荧光信号很强, 使二维测量也成为可能。图中除了三条明显的谱线外, 在每条单一谱线的周围还有一系列强度比这条峰值谱线小得多的小峰, 它们产生的原因是由转动能量转移 (RET) 引起: 由于

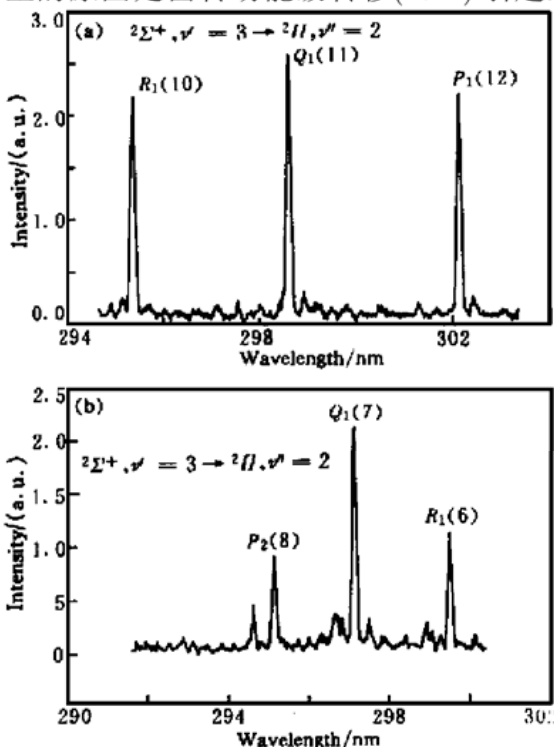


Fig. 3 OH dispersion spectrum at higher resolution (two)

分子的非弹性碰撞, 使粒子数在 $^2\Sigma^+, v' = 3$ 态重新分配。除了 $N' = 11(8)$ 态外, $N' = 9(7), 10(8), 12(11)$ 等转动态的粒子数增加, 产生荧光。很明显, $Q_1(11)$ 激励产生的荧光信号的转动能级转移现象远小于 $P_2(8)$ 激励线, 这是由于粒子在 $A^2\Sigma^+, v' = 3, N' = 11$ 的预分离速率 k_{pre} 远大于 $A^2\Sigma^+, v' = 3, N' = 7$ 的预分离速率, 因此碰撞机会减少, 转动能级转移变弱的缘故。

图 4 是用宽带 KrF 激光激励时激发的荧光谱线。从图 4 可以看出, 尽管激光的频率没有固定在某条共振线上, 但仍然可以看到很多 OH 的荧光谱线, 这是因为所用激光器能量很高, 虽然是宽带, 但光谱亮度仍然大于 3 mJ/cm^{-1} , 因此只要 OH 分子的某共振线包括在宽带激光的波长范围内, 就可以看到它相应激发的荧光谱线。当然, 由于宽带时谱线亮度要比窄带的谱线亮度低得多, 因此相应的荧光信号要比窄带共振时低得多, 荧光谱也复杂得多。但是由于光谱仪的分辨率较高, 根据它们的谱线位置, 其中的一些荧光信号可以被分辨出是由哪种激励线所引起的, 根据它们的荧光信号强度比, 也可以求出燃烧场的温度值 [如图 4 所示 $R = S_{P_2(8)}/S_{Q_1(11)}$]。

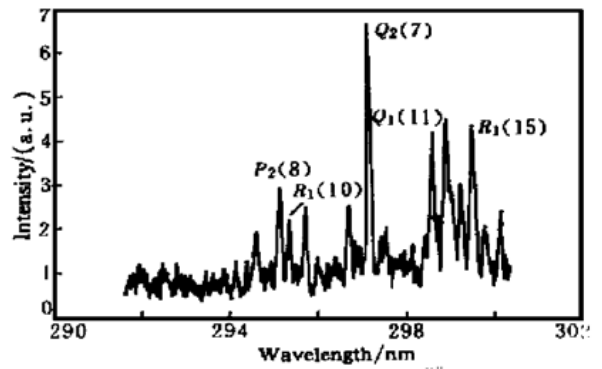


Fig. 4 OH dispersion spectrum. OH is excited by the broadband laser

2) 温度测量。图 5 是激光诱导预分离荧光法测温 and 裸端式双铂铑热电偶的测量结果比较。通过改变甲烷和空气的流量来改变温度值。由于裸端式双铂铑热电偶在稳定燃烧场中测量误差小于 2°C , 因此在此用来标定激光诱导预分离荧光法测温的误差大小。实验发现, 激光诱导预分离荧光法测温, 在本文的实验条件下, 无论是窄带激励或宽带激励, 它的绝对误差都小于 50°C , 相对误差小于 3%。

宽带激励测温与窄带激励测温相比, 由于它测量的是同一束激光穿过火焰时不同激励线诱发的荧光信号比, 所以它的优点是可以消除激光能量不稳

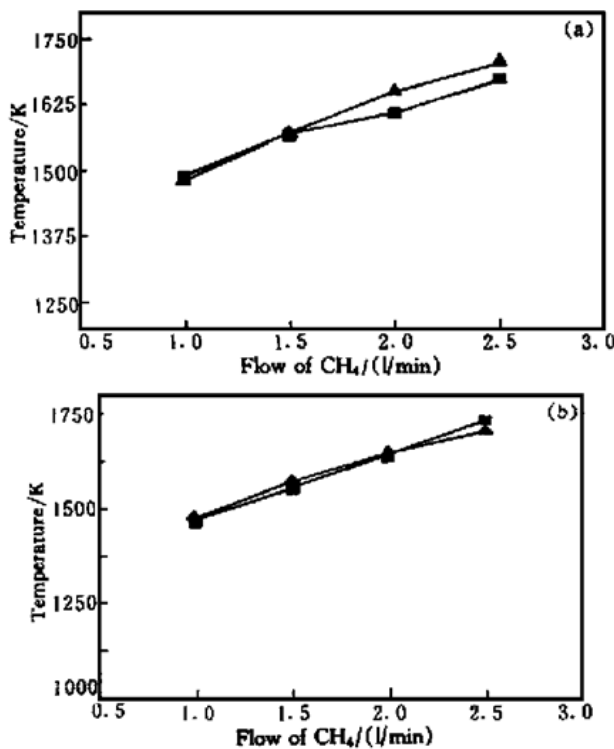


Fig. 5 The comparison of the temperatures. (a) LIPE with narrow-band method, (b) LIPE with broad-band method. ■: calculated by LIPE; ▲: measured by thermocouple

定和火焰抖动等因素给测温带来的误差。另外,利用宽带法测温,用一台激光器即可完成对非稳定燃烧场瞬时温度的测量,而窄带法测温对非稳定燃烧场瞬时温度的测量需用两台激光器才可完成。宽带法测温的缺点是由于荧光信号较弱,信噪比较窄带激励时低,所以,在本实验中,对一些特别复杂的燃烧场(如固体推进剂火焰),利用宽带激光激励已不能测到OH基的荧光信号。

讨论 实验表明,利用可调谐准分子激光器激励OH分子的不同跃迁,由于分子在上能态的预分离时间很短,因此利用激光诱导预分离法测量常压甚至更高压力下燃烧场的温度是非常容易的,不用进行大量的、甚至不可靠的数据纠正。虽然宽带激励荧光信号比窄带激励的荧光信号弱,但在该实验条件下,由于在方法上消除了激光能量和火焰抖动的影响,测量误差反比窄带激励的测量误差小;窄带激励的荧光信号很强,因此间接表明利用激光诱导分离荧光法测量二维甚至三维温度场都是可能的。

参 考 文 献

- [1] Rothe E W, Andresen P. Application of tunable excimer lasers to combustion diagnostics: A review. *Appl. Opt.*, 1997, **36** (18): 3971~ 4033
- [2] Andresen P, Meijer G, Schluter H *et al.*. Fluorescence imaging inside an internal combustion engine using tunable excimer lasers. *Appl. Opt.*, 1990, **29**(16): 2392~ 2404
- [3] Seitzman J M, Hanson R K. Application of quantitative two-line OH planar laser-induced fluorescence for temporally resolved planar thermometry in reacting flows. *Appl. Opt.*, 1994, **33**(18): 4000~ 4012
- [4] Hanson R K, Seitzman J M, Paul P H. Planar laser fluorescence imaging of combustion gases. *Appl. Phys. (B)*, 1990, **50**(6): 441~ 454
- [5] Andresen P, Bath A, Groger W *et al.*. Laser induced fluorescence with tunable excimer lasers as a possible method for instantaneous temperature field measurements at high pressures: Checks with an atmospheric flame. *Appl. Opt.*, 1988, **27**(2): 365~ 378
- [6] Dieke G H, Crosswhite H M. The ultraviolet bands of OH. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 1962, **2**: 97~ 199

Study on Instantaneous Temperature Measurement in a Flame by LIPF

Guan Xiaowei Liu Jingru Huang Meisheng Li Zhefu Zhang Zhenrong Liu Jianshang
(Northwest Institute of Nuclear Technology, Xi'an 710024)

(Received 17 May 1999; revised 24 December)

Abstract: The principles and the experimental results for temperature measurements by laser-induced predissociative fluorescence (LIPF) are presented. With a tunable KrF excimer laser, the fluorescence of OH radical was obtained in a methane-air flame at the pressure of atmosphere and the structures of the spectrum were analyzed. The temperatures in the flame were also measured by LIPF narrow-band and broad-band methods. By selecting proper excited lines, subtracting background noises and choosing moderate laser energy, both the precision is less than 3%.

Key words: laser-induced predissociative fluorescence; KrF laser; temperature measurement