

光热偏转光谱和光声偏转光谱用于燃烧诊断的研究¹⁾

R. Gupta

(美国阿肯色大学物理系)

聂玉昕

(中国科学院物理研究所)

一、用于燃烧诊断研究的光学方法概述

燃烧是非常复杂的现象,对燃烧的诊断和研究可能导致产生具有更高效率和无环境污染的燃烧设备。因而人们对发展新的燃烧诊断方法和技术有着浓厚的兴趣。

燃烧过程中,或者简单地说,火焰中三个主要的参数是各种成分的含量、流动速度和温度,自然也包括这些参数的空间分布和随时间的变化。理想的燃烧诊断技术,应能实时地测量这些参数而并不扰动火焰;应当具有较高的空间分辨能力和时间分辨能力;具有较高的测量灵敏度。当然,人们还希望这种技术简单易行,不需要非常昂贵的设备。

一般地说,光学方法对火焰的扰动很小,较早受到了人们的重视。激光技术的进步,又极大地增强了光学方法诊断燃烧过程的能力。使用激光技术诊断燃烧的光学方法主要有:(1)激光感生荧光;(2)饱和激光感生荧光;(3)喇曼散射;(4)相干反斯托克斯喇曼散射;(5)激光多普勒测速;(6)光热偏转光谱;(7)光声偏转光谱方法等。现将这几种方法的主要特点简述如下:

1. 激光感生荧光^[1]

一束激光射入火焰,其频率恰好能使待测分子激发,分子会发射荧光。荧光波长一般不同于入射激光波长,并为待测分子所特有,因此,检测荧光强度能够得到待测分子的密度。如火焰处于热平衡状态,则分子在各能级上的分布服从玻耳兹曼分布。如能测得分子在转动能级

上的分布,就可得到转动温度。如转动温度和平动温度相等,它就是火焰的温度。所以测出荧光的谱,就能得到火焰的温度。该方法具有较高的空间分辨能力和灵敏度。这种方法存在的问题是分子受到激发以后,有许多能量转移过程和荧光过程竞争,并导致分子猝灭。由于难于掌握火焰中各种猝灭过程的定量数据,因而会影响荧光检测数据的可靠性^[2]。

2. 饱和激光感生荧光^[3]

增大入射激光强度,使分子的受激发射速率远大于猝灭速率,这就解决了激光感生荧光方法中猝灭带来的影响,并保留了高空间分辨能力和较高灵敏度的优点。这种方法的不足之处是需要较高功率的可调谐辐射源,同时,许多分子的吸收带是在紫外波段,它们并不是都容易达到饱和的。

3. 喇曼散射

一束强激光射入火焰,其分子喇曼散射谱带有散射分子的特征,其强度与该分子的密度成正比,其谱分布可给出火焰的温度,因而喇曼散射是一种测量火焰温度和成分的有效方法,而且它不要求入射激光调谐。该方法的缺点是喇曼散射的截面太小,能收集到的散射光很弱,因而信噪比较低。

4. 相干反斯托克斯喇曼散射(CARS)

共线的两束强激光射入火焰,两束光的频率之差($\nu_1 - \nu_2$)等于待测喇曼活性分子的跃

1) 本文介绍的这项研究工作是由美国空军莱特航空实验室(Air Force Wright Aeronautical Laboratories)支持的。

迁频率, 由于三阶非线性光学效应所产生相干反斯托克斯波, 其频率 $\nu_s = 2\nu_1 - \nu_2$. 在位相匹配的条件下, 散射光集中在前向很小的立体角内, 因而易于接收. 测量分子在振动-转动能级上的分布可给出火焰温度. 该方法的缺点是不适于测量火焰中低密度的成分^[4].

5. 激光多普勒测速

激光被流动介质散射时发生多普勒频移, 测量频移的大小可给出介质流动速度^[5]. 此方法具有较高的空间和时间分辨率. 其缺点是测量时要向流体掺入小粒子, 测量的是光从小粒子上的散射, 给出的是小粒子的速度. 有时小粒子会滞后于流体, 也有时不便掺入小粒子. 另外, 此方法不适于低速度的测量, 因为速度低时频移太小.

6. 光热偏转光谱

光热偏转光谱的研究工作在八十年代初期才有文献[6—10]报道, 并在本文第一作者的实验室里首次应用于燃烧诊断^[11]. 其原理如图1(a)所示. 泵浦光束可被火焰中的某一成分吸收, 吸收的光能通过猝灭碰撞变成热, 而热将改变火焰气体的折射率, 从而使探测光速发生偏转, 这一偏转易于由位置灵敏探测器检测, 如图1(b)所示. 探测光束偏转的幅度正比于吸收入射光成分的密度, 因而可用于成分密度的测量. 探测光速偏转后返回原来位置的时间, 是热扩散的时间, 因而信号宽度取决于热扩散时间常

数, 而热扩散时间常数与温度有关, 所以偏转信号宽度中含有局域温度的信息, 因而可能由光热偏转光谱来测量火焰温度. 如图1(c)所示, 在泵浦光束上放置二探测光束, 被泵浦光束加热的气体将先后经过二探测光束, 使二探测光束先后发生偏转. 如已知二探测光束间的距离 Δd , 并测得两探测光束偏转的时间差 Δt , 则可得出流体的速度 $v = \Delta d / \Delta t$.

7. 光声偏转光谱

光声偏转光谱也是在本文第一作者的实验室首先应用于燃烧诊断的^[12]. 其原理类似于光热偏转光谱, 不同之处在于气体受热后急剧膨胀, 从而产生压强变化. 由于折射率正比于压强, 所以声波传播途中可引起探测光束偏转(如图2所示). 光声偏转光谱不仅可用来测量火焰中一些成分的密度, 还可以测量火焰温度^[13]. 火焰中的声速与温度有关, 所以测量火焰中的声速可以导出火焰的温度.

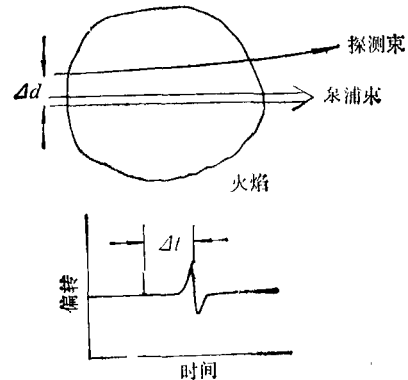


图2 光声偏转光谱原理示意图

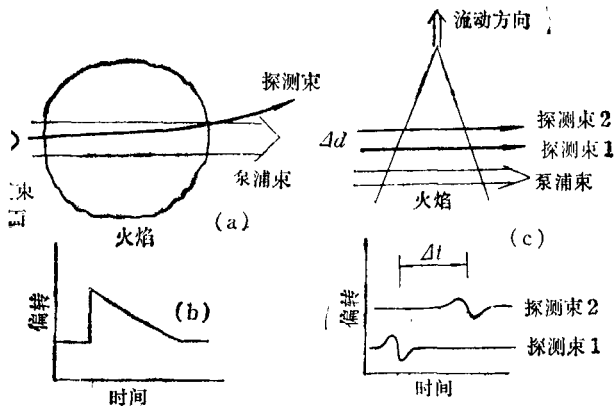


图1 光声偏转光谱及其用于速度测量的原理示意图

物理

二、光热偏转光谱和光声偏转光谱的理论概要

实验上观测到的光热偏转及光声偏转信号(幅度、宽度、形状等), 不仅与火焰的诸参数(成分、速度、温度)有关, 还与实验条件(如泵浦光强度、泵浦光束与探测光束的相对位置、光斑直径、泵浦光脉冲宽度等)有关. 无论从选择最佳实验条件的角度, 还是从找出信号与待测诸火焰参数之间联系的角度上看, 发展定量的光热

偏转光谱和光声偏转光谱理论, 都是应用这两种光谱技术的基础。

1. 光热偏转光谱

设流体流动方向与 x 轴方向相同, 流动速度为 v_x , 泵浦光束沿 x 轴, 探测光束沿 y 轴方向, 则探测光束的偏转角为^[14]

$$\Phi(x, t) = \frac{1}{n_0} \frac{2n}{2T} \int \frac{2T(x, y, t)}{2x} dy,$$

式中 n 为介质的折射率, 温度分布 T 由下列偏微分方程的解给出:

$$\frac{2T(x, y, t)}{2t} + v_x \frac{2T(x, y, t)}{2x} = D \nabla^2 T(x, y, t) + \frac{1}{\rho C_p} Q(x, y, t)$$

方程左边第二项是流动的效应, D 为扩散系数, 含 D 的项是扩散效应, 方程右面第二项是源项, ρ 为密度, C_p 为热容量, $Q(x, y, t)$ 由下式给出:

$$Q(x, y, t) = \begin{cases} \frac{2\alpha E_0}{\pi a^2 t_0} \exp[-2(x^2 + y^2)/a^2] & 0 \leq t \leq t_0, \\ 0 & t > t_0, \end{cases}$$

式中 α 为吸收系数, E_0 为泵浦光单脉冲能量, t_0 为脉冲宽度, a 为泵浦光半径。偏微分方程的解为

$$T(x, y, t) = \frac{2\alpha E_0}{\pi t_0 \rho C_p} \times \int_0^{t_0} \{ \exp\{-2[(x - v_x(t - \tau))^2 + y^2]/[a^2 + 8D(t - \tau)]\} / [a^2 + 8D(t - \tau)] \} d\tau.$$

此解在 $t > t_0$ 时有效, 将此解代入 $\Phi(x, t)$ 的表达式中, 得到偏转角的表达式为

$$\Phi(x, t) = -\frac{1}{n_0} \frac{2n}{2T} \frac{8\alpha E_0}{\sqrt{2\pi t_0 \rho C_p}} \times \int_0^{t_0} \frac{[x - v_x(t - \tau)]}{[a^2 + 8D(t - \tau)]^{3/2}} \times \exp\{-2[x - v_x(t - \tau)]^2/[a^2 + 8D(t - \tau)]\} d\tau.$$

用计算机进行数值计算, 可以得到不同条件下偏转角随时间的变化, 这些结果可以和实验值

进行定量比较。图 3 给出计算结果与相同参数下的实验数据比较的例子。

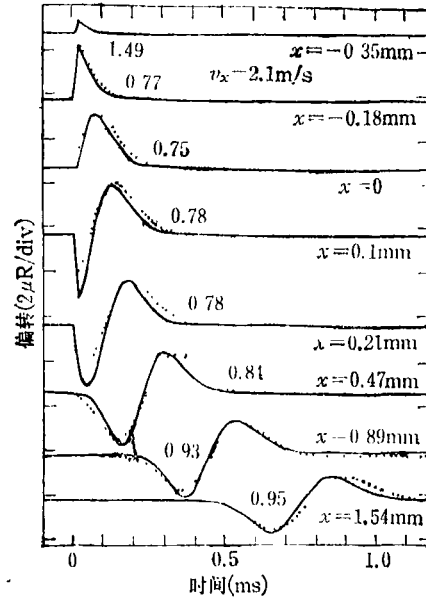


图 3 光热偏转光谱理论计算结果与实验值的比较 (图中实线为理论值, 虚线为实验值。 x 为泵浦光束与探测光束间的距离, $x > 0$ 表示探测束在泵浦束的下游方向, $x < 0$ 表示探测束在泵浦束的上游方向, v_x 值为流速, 每条曲线边的数字表示理论曲线的放大倍数, 以便在相同的幅度下和实验值比较)

2. 光声偏转光谱

依据连续性方程:

$$\frac{2\rho}{2t} + \rho_0 \nabla \cdot \mathbf{v} - \rho_0 \beta \frac{2T}{2t} = 0,$$

动量守恒方程为 $\rho_0 \frac{2\mathbf{v}}{2t} + \nabla p = 0,$

能量守恒方程为 $\rho_0 c_p \frac{2T}{2t} = Q(r, t),$

其中 $Q(r, t) = \frac{2\alpha P_0}{\pi^{3/2} a^2} \exp\left(-\frac{2r^2}{a^2} - \frac{t^2}{\tau^2}\right),$

其中 $P_0/\pi^{3/2}$ 是泵浦光的峰功率, β 为体膨胀系数, 1.67τ 为泵浦光的脉冲宽度, $r^2 = x^2 + y^2$ 。

使上列方程联立可得

$$\left(\nabla^2 - \frac{1}{v_s^2} \frac{2}{2t}\right) p = -\frac{\alpha\beta}{c_p} \frac{2}{2t} \times \left[\frac{2P_0}{\pi^{3/2} a^2} \exp\left(-\frac{2r^2}{a^2} - \frac{t^2}{\tau^2}\right)\right],$$

其中 v_s 为声速。此方程的解为

$$p(r, t) = \frac{E_0 \alpha \beta}{(2\pi \epsilon)^{3/2} c_p} \left(\frac{v_a^*}{r} \right) F(x),$$

其中

$$F(x) = e^{-x^2} \left[\Gamma(3/4) M \left(-\frac{1}{4}, \frac{1}{2}, x^2 \right) - 2x \Gamma(5/4) M \left(\frac{1}{4}, \frac{3}{2}, x^2 \right) \right],$$

$\Gamma(s)$ 为 γ 函数, $M(\alpha, \beta, z)$ 是简并超几何函数,

$$\epsilon = \left(\tau^2 + \frac{a^2}{2v_a^2} \right)^{1/2}, \quad x = \left(t - \frac{r}{v_a} \right) / \epsilon,$$

代入后可求出偏转为

$$\Phi = \frac{1}{n_0} \frac{\partial n}{\partial p} \int_{p_0+h}^p \frac{\partial p}{\partial r} ds = -\frac{l}{n_0} \frac{\partial n}{\partial p} \frac{E_0}{(2\pi \epsilon)^{3/2}} \times \frac{\alpha \beta}{c_p} \left(\frac{v_a^*}{r} \right)^{1/2} \left[\frac{1}{2r} F(x) + \frac{1}{v_a \epsilon} F'(x) \right].$$

由此式计算的偏转角数据, 亦可和实验值进行定量比较. 图4给出计算结果与相同参数下的实验数据比较的例子.

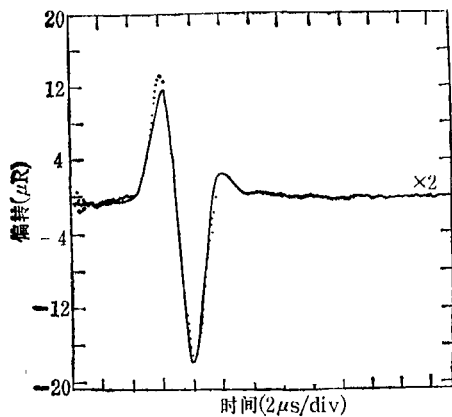


图4 光声传转光谱理论计算结果与实验结果的比较
(图中实线为计算值, 点为实验值. 计算和实验诸参数如下: $\tau = 1\mu\text{s}$; $a = 0.46\text{mm}$; $E_0 = 1\text{mJ}$; $v_a = 0$; 泵浦光束与探测光束间的距离 $r = 1.89\text{mm}$; 声速 $v = 345\text{m/s}$)

五、火焰中的 OH 密度测量

OH 是许多燃烧过程都会产生的自由基, 因而 OH 的测量技术带有一定的普遍性. 用光热偏转光谱和光声偏转光谱测量火焰中 OH 密度的设备相同, 如图5所示.

泵浦光束来自一台 Chromatix CMX-4 型脉

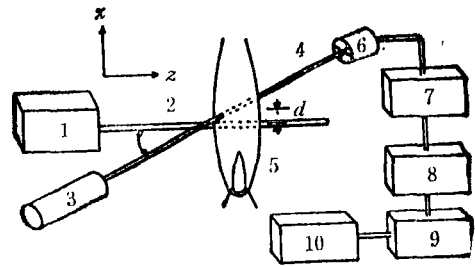


图5 用光热偏转光谱和光声偏转光谱技术测量火焰中 OH 密度的实验装置

(1.脉冲染料激光器; 2.泵浦光束; 3.氩氦激光器; 4.探测光束; 5.火焰; 6.位置灵敏探测器; 7.差分放大器; 8.瞬态数字化器; 9.PET 计算机; 10.绘图仪和磁盘驱动器)

冲闪光灯泵浦的染料激光器, 经腔内 ADD 晶体倍频, 可输出 310nm 附近可调谐的紫外光, 用以激发 OH 的 $x^2\Pi-A^2\Sigma$ 带. 激光脉宽为 $1\mu\text{s}$, 单脉冲能量为 $100\mu\text{J}$ 左右. 探测光束用氩氦激光器产生, 它指向位置灵敏探测器的中心. 探测光束不偏转时, 差分放大器的输出是零. 偏转信号经放大送入瞬态数字化器 (LeCroy WD 8256), 它与示波器及一台微计算机 (Commodore PET) 相连, 偏转信号可在示波器上实时显示, 也可经微机进行处理、显示、记录和绘图后输出.

产生火焰的装置是一台直径为 6cm 的不锈钢平口燃烧器, 在大气压下运转, 它装在可由马达移动的架子上, 以便测量 OH 的空间分布.

泵浦光束和探测光束均由透镜聚焦至火焰的待测部位, 它们之间的角度和距离均可改变. 图6给出两束光在不同距离时的光热偏转和光声偏转信号.

由图6可以看出, 光热偏转信号随两束光距离的增加减小很快, 故它只能在 d 很小的情况下才易于观测, 而光声偏转信号随距离 d 的变化不太显著.

图7示出用光热偏转光谱方法测到的丙烷-空气火焰中的 OH 分布. 这些数据是用取样积分器测到的. 为使火焰稳定, 在火焰上面 30cm 处置一烟囱. 染料激光器调谐到 308.7nm 处的 $Q_1(6)$ 线.

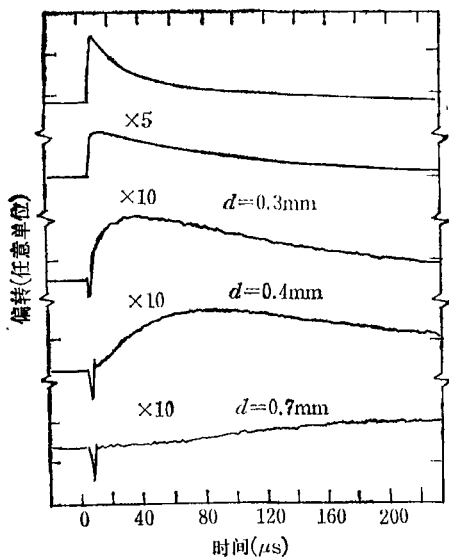


图6 泵浦光束与探测光束在不同距离时的光热和光声偏转信号

(上面两条曲线是在距离很小的情况下得到的,只有较宽的光热偏转信号。下面三条曲线上窄的尖脉冲是光声偏转信号,×5和×10分别表示纵坐标放大5倍和10倍)

图8示出用光声偏转光谱法测到的丙烷-空气火焰中的OH分布。

图7和图8中的OH密度值是用激光吸收法标定后得到的^[12]。也就是说,目前用光热偏转光谱和光声偏转光谱法测到的是相对密度值。在光热偏转光谱和光声偏转光谱理论的基

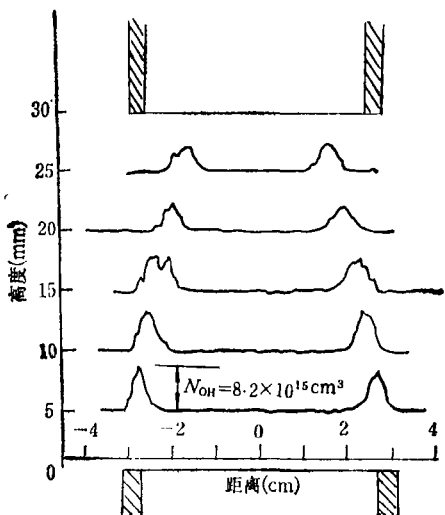


图7 用光热偏转光谱法测到的丙烷-空气火焰中的OH分布

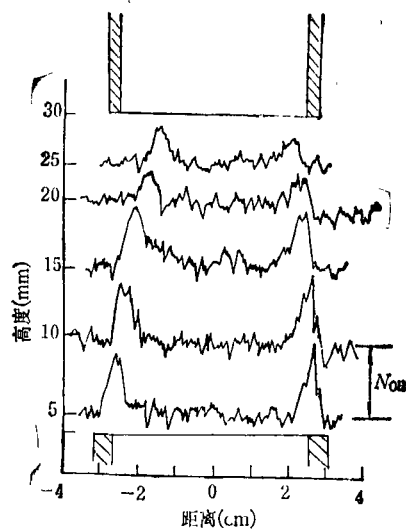


图8 用光声偏转光谱法测到的丙烷-空气火焰中的OH分布
(图中 $N_{OH} = 8.2 \times 10^{12} \text{cm}^{-3}$)

础上,如果知道火焰主要成份和火焰温度下主要成份的热力学数据和光学数据,就可以通过偏转角度的测量得出吸收系数值,从而给出待测成份的绝对密度,这在原则上是可行的,实验工作正在进行中。

四、火焰中的速度测量

用光热偏转光谱技术测量火焰中的流体速度^[16]的原理已在本文第一部分和图1(c)中作了说明,其实验设备与图5相同,这里使用的是玻璃吹制的喷火器喷出的氢氧火焰。激光器调谐至OH的 $Q_2(5)$ 线(309.2nm)。探测光束与泵浦

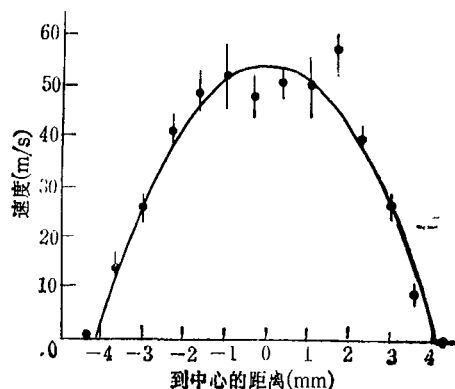


图9 氢氧火焰的速度剖面,泵浦光位于火焰喷口上方40mm处,喷口内径为2.5mm

光束可相对移动。实验上记录探测光束在泵浦光束不同高度上热脉冲的到达时间,从而给出流体的速度。这样可进行逐点的速度测量。使火焰相对光束移动,可得到火焰的速度剖面。实验测到的氢氧火焰速度剖面示于图9。曲线是抛物线拟合。

图9的实验结果表明,抛物线拟合和实验点一致。基于相似的原理,光声偏转光谱也可用于火焰速度测量,但由于火焰中的声速一般较流体速度大得多,测量的精确度要差一些。

五、火焰温度测量

用光声偏转光谱方法测量火焰温度是根据温度与火焰中的声速有关,即 $T_f = k_f v_f^2$ 。这里的下标 f 表示火焰, k_f 为依赖于火焰成份的常数。在室温进行同样的声速测量,则 $T_r = k_r v_r^2$, 这里 r 表示室温。由此得出 $T_f = T_r (k_f/k_r) \cdot (v_f/v_r)^2$ 。如果火焰的成份是已知的,则 k_f 与 k_r 均可通过计算得到。如果是测量相对温度分布,可设 $k_f/k_r = 1$, 这样即可通过 v_f 和 v_r 的测量得到火焰温度 T_f 。

用光声偏转光谱法测量火焰温度的装置与图5类似。通常将泵浦光聚焦在火焰中的细丝上,使丝局部加热,由丝加热周围气体,使气体压强变化,声脉冲到达探测光束位置时就引起探测光束的偏转。测量声脉冲的到达时间 Δt 和声源与探测光束的距离 Δd , 则声速 $v = \Delta d/\Delta t$ 。实际上如果分别测量火焰中的 Δt_f 和

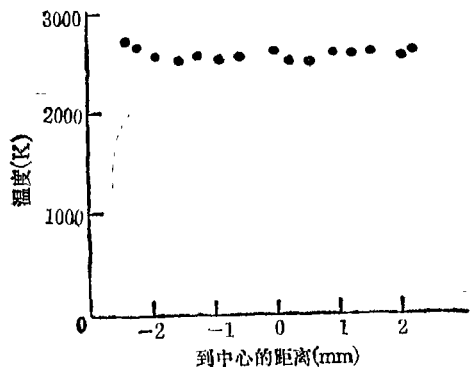


图10 乙炔-氧火焰的温度剖面

室温下的 Δt_r , 则有 $T_f = T_r (\Delta t_r/\Delta t_f)^2$ 。

实验中使用氧炔焊枪的发烟火焰,声信号由烟粒子吸收光而产生,可不使用金属丝。火焰喷口直径为 8.8mm。在喷口上方 40mm 处测得火焰的温度分布如图 10 所示^[17]。所测到的温度约为 2600K, 该温度值对乙炔-氧火焰是合理的^[18]。

六、结 论

综上所述,光热偏转光谱和光声偏转光谱技术已成功地应用于燃烧诊断,测得了火焰中的 OH 密度的相对值、气体速度和火焰温度数据,这些数据是合理的和可信的。这两种技术的特点是:(1)对火焰的扰动极小。就实验中使用的激光功率,火焰受到照射部分的温升小于 1K。(2)具有空间分辨能力。其空间分辨率大约为泵浦光束与探测光束重叠部分的尺寸,激光束经聚焦后的光斑直径一般在 0.1mm 量级,因而空间分辨率可以很高。(3)具有时间分辨能力。使用脉冲泵浦光,单次运行就可能得到相应的参数。(4)灵敏度高,可检测出 0.1 μ Rad 的偏转信号,对应很低的气体密度。(5)可实时测量。(6)和其它火焰诊断方法比较,这种方法简便易行,只需普通的设备。

还应当指出,其它火焰诊断技术,一般只能测量火焰的某一参数,其中少数可测量火焰中的两项参数(如密度和温度),而光热和光声偏转光谱技术,则存在着同时测量火焰三个主要参数的可能性,因为偏转信号的幅度、宽度和形状可能同时与三个火焰参数有关。

光热偏转光谱技术与光声偏转光谱技术是互相补充的,将它们应用于火焰诊断,尚处于开始阶段,还有不少理论与实验工作需要进一步探索和研究。

参 考 文 献

- [1] D. R. Crosley, Laser Probes for Combustion Chemistry, American Chemical Society, Washington, D. C., (1980), 61—207.

- [2] A. C. Eckbreth, et al., *Progress in Energy and Combustion Science*, 5(1979), 255.
- [3] A. C. Eckbreth et al., *Investigation of Saturated Laser Fluorescence and CARS Spectroscopic Techniques for Combustion Diagnostics*, United States Environmental Protection Agency, Publication No. -600/7-78-107, June 1978.
- [4] W. Demtroder, *Laser Spectroscopy, Basic Concepts and Instrumentation*, Springer-Verlag, New York, (1982).
- [5] L. E. Drain, *The Laser Doppler Technique*, Wiley, New York, (1980).
- [6] C. C. Davis, *Appl. Phys. Lett.*, 36(1980), 515.
- [7] A. C. Boccara et al., *Appl. Phys. Lett.*, 36(1980), 130.
- [8] A. C. Boccara, et al., *Opt. Lett.*, 5(1980) 377.
- [9] D. Fournier et al., *Appl. Phys. Lett.*, 37(1980), 519.
- [10] W. B. Jackson et al., *Appl. Opt.*, 20(1981), 1333.
- [11] A. Rose et al., *Appl. Opt.*, 21(1982), 2663.
- [12] A. Rose et al., *Appl. Opt.*, 23(1984), 781.
- [13] W. Zapka et al., *Opt. Lett.*, 7(1982), 477.
- [14] A. Rose et al. *Appl. Opt.*, to be published.
- [15] A. Rose et al., *Appl. Opt.*, 23(1984), 1573.
- [16] A. Rose and R. Gupta, *Opt. Lett.*, 10(1985), 537.
- [17] A. Rose and R. Gupta, *Opt. Comm.*, 56(1986), 303.
- [18] A. G. Gaydon H. G. Wolfhard, *Flames, Their Structure, Radiation and Temperature* Chapman and Hall, London, (1979).

(上接第214页)

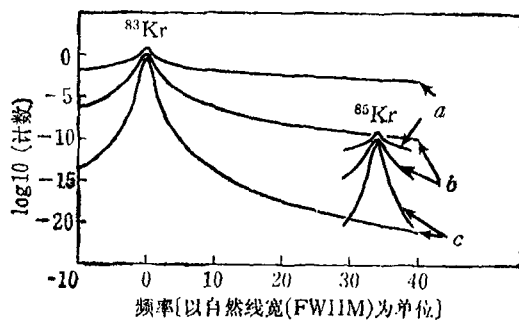


图8 在 ^{83}Kr 多 10^{10} 倍的条件下, ^{85}Kr 的荧光测量和光子组测量的理论线形
(每个原子产生的被探测光子平均数为6. 曲线a——总计数; 曲线b——多重性 ≥ 3 ; 曲线c——多重性 ≥ 6)

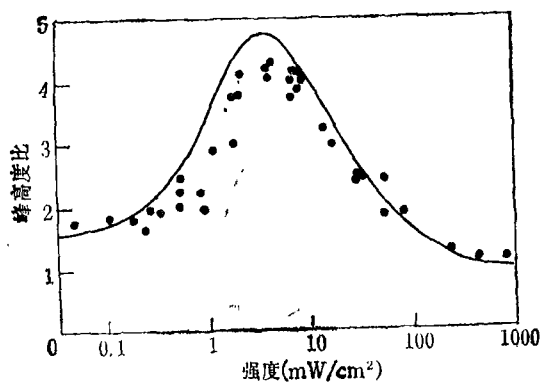


图9 钡的 $F = 5/2$ 跃迁对 $F = 3/2$ 跃迁($^1P_1 \rightleftharpoons ^1S_0$)的峰高度比的理论值(实线)和实验值(圆点)

很难用普通的核计数方法来探测, ^{85}Kr 对全部Kr的典型比值为 10^{-11} ,这就使 ^{85}Kr 极难用质

谱方法来探测.此外,天然存在的 ^{85}Kr 具有和 ^{81}Kr 一样的核自旋和类似的超精细光谱,因此减少了同位素之间的光谱间隔.最近的一篇文章^[16]提议用PBA来探测 ^{85}Kr 和其他重要的贵重气体同位素,这种方法包括在贵重气体中产生 $1S'$ 亚稳态,作为一个二能级系统($2p \rightleftharpoons 1S'$)的下能级. ^{85}Kr 和干扰的 ^{83}Kr 的理论计算的PBA光谱和普通荧光光谱在图8中给出.

七、关于连续波过程的注意事项

在许多连续波过程中,尤其是在PBA中,原子将经历好几次“激发/荧光”循环.如果不存在有效的磁场,这也能引起磁亚能级的(光泵)重新分布.这种光泵能造成光谱峰的消失或超精细峰高度比的改变.图9表示钡的 $F = 5/2$ 跃迁对 $F = 3/2$ 跃迁($^1P_1 \rightleftharpoons ^1S_0$)的峰高度之比作为激光功率函数的理论值和实验值.功率下限根据能级简并度而定,比值随着激光功率的增加而增大,因为光泵改变了磁亚能级布居的分布,跃迁的谱线强度也随之变化.在较高的功率下,比值由于饱和效应而下降.想把这些谱线中的某一条线用于分析目的的任何人都显然会关心这个过程.我们研究小组将提出一篇文章,文章给出这个过程的一个模型,并证明在激光功率明显低于饱和值的时候,磁亚能级的重新分布会导致反常的谱线加宽和变窄效应.