

# 非平衡等离子体流场相干反斯托克斯拉曼 散射光谱计算及振转温度测量\*

杨文斌<sup>1)</sup> 张华磊<sup>1)2)</sup> 齐新华<sup>1)†</sup> 车庆丰<sup>1)</sup> 周江宁<sup>1)</sup>  
白冰<sup>1)3)</sup> 陈爽<sup>1)</sup> 母金河<sup>1)</sup>

1) (中国空气动力研究与发展中心设备设计与测试技术研究所, 绵阳 621000)

2) (空军航空大学, 长春 130012)

3) (哈尔滨工程大学物理与光电学院, 哈尔滨 150001)

(2024年4月2日收到; 2024年5月28日收到修改稿)

高温非平衡问题是高超声速流动中最基本的科学问题之一, 而热力学非平衡特性的准确表征是理解高温非平衡问题和高超声速空气动力学的基础, 如何准确可靠地表征流场的热力学非平衡特性是解决高超声速飞行器在稀薄流域高温非平衡问题的关键. 本文基于相干反斯托克斯拉曼散射基本原理, 开发了面向非平衡流场的振转温度反演算法, 并在宽温度范围静态环境开展验证. 搭建了非平衡等离子体流场相干反斯托克斯拉曼散射测温实验平台并开展实验验证, 结果表明微波等离子体处于热力学非平衡状态, 并且振动温度和转动温度与微波功率成正比, 而热力学非平衡度与微波功率成反比, 当微波功率从 80 W 增加至 180 W 时, 等离子体电子数密度增加, 中性粒子通过与电子碰撞获得能量使振动温度从  $(2201 \pm 43)$  K 增加至  $(2452 \pm 56)$  K, 转动温度从  $(382 \pm 20)$  K 增加至  $(535 \pm 49)$  K; 而处于振动激发态的分子通过振动-平动弛豫过程 (对于  $N_2$  分子弛豫速率与温度成正比) 将部分振动能转化为平动能, 导致振动温度与转动温度的差异降低, 等离子体热力学非平衡度从 0.83 降低至 0.78.

**关键词:** 热力学非平衡, 振动温度, 转动温度, 相干反斯托克斯拉曼散射

**PACS:** 42.65.Dr, 52.70.-m, 47.80.Fg, 33.20.-t

**DOI:** 10.7498/aps.73.20240455

## 1 引言

高温非平衡问题是高超声速流动中最基本的科学问题之一, 对高温非平衡问题的认识直接关系到高温空气动力学模型的可靠性和预测天地一致性的有效性, 最终影响高超声速飞行器的气动力和气动热性能<sup>[1-6]</sup>. 而如何准确可靠地表征流场的热力学非平衡特性是解决高超声速飞行器在稀薄流域高温非平衡问题的关键, 对非平衡问题的认识将

直接影响流场结构<sup>[7,8]</sup>、烧蚀和热防护设计<sup>[9,10]</sup>、激波层辐射预测<sup>[11]</sup>、激波脱体距离预测<sup>[12]</sup>等问题研究的准确性. 一方面, 高超声速飞行器在高温非平衡环境下的高温流动、表面化学反应与材料传热等宏观动力学行为的微观本质为分子运动、碰撞以及由此引发的能量在各内能模态的转移和化学键的断键、成键等基元反应, 上述微观过程输运/反应系数的准确定量依赖于温度及其非平衡特性的精确表征和测量, 但现有基于平衡态的反应系数的定义和测量值并不能完全满足高温非平衡过程的描

\* 国家自然科学基金 (批准号: 12202478) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: qxh\_78@sina.com

述. 另一方面, 目前高超声速飞行器的研制严重依赖于地面风洞试验, 流场特性 (温度、焓值以及非平衡特性) 的准确测量以及对天地差异的评估是保证高超声速飞行器地面试验有效性的基础. 而在地面试验中, 由于气体流出喷管后速度急剧上升以及振动能量冻结效应, 流场本身会存在很强的振动-转动非平衡现象, 将造成地面试验环境与实际飞行环境的差异.

目前高温气体流场热力学非平衡特性的表征主要基于分子振动温度和转动温度 (或原子激发温度和平动温度) 的测量, 技术手段有辐射光谱 (optical emission spectroscopy, OES) 技术<sup>[13,14]</sup>、可调谐二极管激光吸收光谱 (tunable diode laser absorption spectroscopy, TDLAS) 技术<sup>[15]</sup>、自发拉曼散射 (spontaneous Raman scattering, SRS) 技术<sup>[16]</sup>、激光诱导荧光 (laser induced fluorescence, LIF) 技术<sup>[17]</sup> 和相干反斯托克斯拉曼散射 (coherent anti-Stokes Raman scattering, CARS) 技术<sup>[18-24]</sup>. 其中, OES 和 TDLAS 技术由于视线积分的局限性, 无法实现存在大梯度 (如激波层) 高温非平衡流场的准确定量和高空间分辨测量, 并且 OES 技术只能实现激发态分子的测量; SRS 技术虽然能够实现单点测量, 但由于其信号很弱且分布于各个方向, 信噪比无法得到有效提升, 从而限制了测量精度; LIF 技术则由于无法量化碰撞淬灭的影响制约了其测量精度. 相比于其他测量手段, CARS 技术采用相干激发, 只在特定方向上存在 CARS 信号, 具有信号指向性好、信噪比高、可测参数多、时空分辨率高、可实现瞬态测量等优势, 非常适合应用于高温非平衡流场测量. Grisch 等<sup>[18]</sup> 于 1993 年基于纳秒 (ns) CARS 技术在 L2K 电弧加热风洞 (试验总焓 6.68 MJ/kg) 和 R5Ch 电加热低焓吹扫风洞上 (总温 1100 K, Mach 10) 测量了自由射流的振动温度和转动温度; Grisch 等<sup>[19]</sup> 于 2000 年基于 ns CARS 技术结合平面交叉相位匹配方式在 L2K 电弧加热风洞 (试验总焓 7.3 MJ/kg, 总温 3910 K) 上获取了二维模型诱导的激波层中  $N_2$  分子的振动温度、转动温度和数密度, 结果显示除振动能级和转动能级处于非平衡外, 转动能级的低能态和高能态也处于非平衡状态; Kim 等<sup>[20]</sup> 于 2011 年利用 CARS 技术测量了 L3K 电弧加热风洞自由来流的振动温度和转动温度; 随后,

Gülhan 等<sup>[21]</sup> 于 2018 年利用 ns CARS 技术在 L3K 电弧加热风洞 (试验总焓 10.1 MJ/kg, 总温 5100 K) 上, 测量了再入飞船模型表面不同距离下的振动温度和转动温度分布, 结果显示了振动温度和转动温度在激波作用下从非平衡到平衡态的演化规律, 同时也表明 CARS 技术较辐射光谱等视线测量方法具有更高的可靠性. Dogariu 等<sup>[22]</sup> 于 2019 年利用飞秒 (fs) CARS 技术在 9 号风洞上实现了 Mach 14 条件 (总温约 1800 K) 下自由来流的振动温度 (1250—1300 K) 和转动温度 (约  $(55\pm 5)$  K) 单脉冲测量; 他们于 2021 年在 9 号风洞上开展了 Mach 18 条件下自由来流的振动温度 (1250—1300 K) 和转动温度 ( $(35\pm 5)$  K)<sup>[23]</sup>, 相关结果表明在高超声速条件下, 振动温度和转动温度由于振动能冻结而处于非平衡状态. Montello 等<sup>[24]</sup> 也开展了基于 ps CARS 技术的高超声速 (Mach 5) 非平衡流场及由圆柱体产生的弓形激波后振动温度和转动温度测量, 并研究了不同组分对流场非平衡特性的影响. 在国内, CARS 技术主要应用于燃烧流场温度测量<sup>[25-28]</sup>, 并已应用于超燃冲压发动机<sup>[26]</sup>、航空发动机实验<sup>[27,28]</sup>, 在高温非平衡流场测量方面还未见相关报道.

本文基于 CARS 基本原理, 结合 MEG (modified exponential gap) 谱线模型, 开发了面向高温非平衡流场热力学非平衡特性表征的 CARS 光谱计算及振转温度反演算法, 从理论上研究了振动温度和转动温度对 CARS 光谱的影响; 搭建了 CARS 振转温度测量系统, 并基于稳态环境在宽温度范围内对所开发的算法准确性进行验证; 构建了基于微波等离子体的非平衡流场环境, 开展了振转温度测量验证实验, 获取了不同微波功率下的振动温度、转动温度及非平衡度, 验证了 CARS 技术用于高温流场振转温度测量及热力学非平衡特性表征的可行性.

## 2 理论基础

### 2.1 CARS 测温原理

气体介质中的 CARS 效应是一种三阶非线性光学效应, 当三束强光入射到气体介质时会发生强非线性相互作用, 耦合产生第四束光即为 CARS 光. CARS 过程的能级跃迁如图 1 所示.

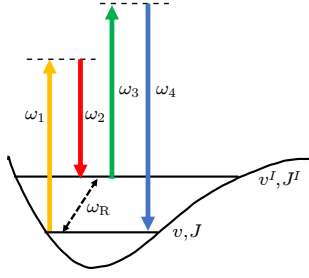


图 1 CARS 过程示意图

Fig. 1. Schematic diagram of the CARS.

双原子分子的 CARS 光谱强度表达式为<sup>[29]</sup>

$$I_4 = \frac{\mu^2 \omega_4^2}{n_1 n_2 n_3 n_4} \left| \chi_R^{(3)} + \chi_{NR} \right|^2 I_1 I_2 I_3 L^2 \frac{\sin^2(\Delta k L / 2)}{(\Delta k L / 2)^2}, \quad (1)$$

式中,  $\mu$  为磁导率;  $n_i$ ,  $I_i$  分别为介质在光波频率为  $\omega_i$  ( $i = 1, 2, 3, 4$ ) 时的折射率和光强;  $\chi_R^{(3)}$ ,  $\chi_{NR}$  分别为三阶非线性极化率的共振和非共振部分;  $L$  为相干长度即三阶非线性极化作用长度;  $\Delta k$  为波矢失配量. 在不存在单光子电子共振的条件下, 共振三阶非线性极化率可近似为

$$\chi_R^{(3)} = \sum_J \frac{8\pi^2 \varepsilon_0 c^4 (N_a - N_b)}{\hbar \omega_2^4 (\omega_J - \omega_1 + \omega_2 - i\Gamma_J)} \left( \frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_J, \quad (2)$$

式中  $\varepsilon_0$  为真空中的介电常数;  $c$  为光速;  $\hbar$  为约化普朗克常数;  $\omega_J$  为转动量子数  $J$  对应的跃迁频率;  $\left( \frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_J$  为微分拉曼散射截面;  $\Gamma$  为拉曼线宽;  $N_a$  和  $N_b$  分别为低能态和高能态粒子数密度并且服从玻尔兹曼分布,

$$N_{v,J} = \frac{N}{Q_v Q_J} I_J (2J+1) e^{-\frac{1}{k_B} \left[ \frac{G(v)}{T_v} + \frac{F(v,J)}{T_r} \right]}, \quad (3)$$

其中,  $k_B$  为玻尔兹曼常数;  $G(v)$  和  $F(v, J)$  分别为分子的振动、转动项值;  $Q_v$  和  $Q_J$  分别为振动配分函数、转动配分函数;  $T_v$  和  $T_r$  分别为振动温度、转动温度;  $I_J$  为核自旋简并, 对于  $N_2$  分子,  $J$  为偶数时为  $I_J = 6$ ,  $J$  为奇数时为  $I_J = 3$ .

由此可见, CARS 光谱分布强烈依赖于目标分子的振动温度和转动温度, 因此可以通过 CARS 光谱分布来反演目标分子的振动温度和转动温度.

### 2.1.1 微分拉曼散射截面

对于  $Q$  支, 微分拉曼散射截面  $\left( \frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_J$  由下式计算:

$$\left( \frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_{v,J} = \left( \frac{\omega_2}{c} \right)^4 \left( \frac{\hbar}{2\omega_0} \right) \left[ \frac{\alpha^2}{M} + \frac{4}{45} \frac{\gamma^2}{M} b_J^J \right] (v+1). \quad (4)$$

这里  $\omega_0$  为分子振动频率;  $M$  为分子质量;  $\alpha$  和  $\gamma$  的值以及 Placzek-Teller 系数  $b$  由下式确定:

$$\frac{\alpha^2}{M} = \frac{2\omega_0}{3\hbar g_v} \left( \frac{c}{\omega_2} \right)^4 \frac{(3-4\rho)}{1+\rho} \sigma_{zz}, \quad (5a)$$

$$\frac{\gamma^2}{M} = \frac{30\omega_0}{\hbar g_v} \left( \frac{c}{\omega_2} \right)^4 \frac{\rho}{1+\rho} \sigma_{zz}, \quad (5b)$$

$$b_J^J = \frac{J(J+1)}{(2J-1)(2J+3)}, \quad (5c)$$

其中  $g_v = v+1$ ,  $v$  为振动量子数; 对于  $N_2$  分子有  $\sigma_{zz} = 3.7 \times 10^{-31} \text{ cm}^2$ ,  $\omega_0 = 2331 \text{ cm}^{-1}$ ,  $\rho = 0.022$ .

### 2.1.2 跃迁频率

对于  $Q$  支, 跃迁选择定则为  $\Delta J = 0$ , 跃迁频率  $\omega_J$  由下式计算:

$$\omega_J = [G(v+1) + F(v+1, J)] - [G(v) + F(v, J)], \quad (6)$$

其中

$$G(v) = \omega_e \left( v + \frac{1}{2} \right) - x_e \omega_e \left( v + \frac{1}{2} \right)^2 + y_e \omega_e \left( v + \frac{1}{2} \right)^3 + z_e \omega_e \left( v + \frac{1}{2} \right)^4, \quad (7a)$$

$$F(v, J) = B_v J(J+1) - D_v J^2(J+1)^2 + H_v J^3(J+1)^3, \quad (7b)$$

$$B_v = B_e - \alpha_e \left( v + \frac{1}{2} \right) + \gamma_e \left( v + \frac{1}{2} \right)^2, \quad (7c)$$

$$D_v = D_e - \beta_e \left( v + \frac{1}{2} \right) + \delta_e \left( v + \frac{1}{2} \right)^2, \quad (7d)$$

$$H_v = H_0 - H_e \left( v + \frac{1}{2} \right). \quad (7e)$$

上述计算中所用分子常数如表 1 所列<sup>[30]</sup>.

表 1 计算跃迁能级项所用  $N_2$  分子常数  
Table 1. Nitrogen molecular constants used in transition energy terms.

常数	数值/cm <sup>-1</sup>	参数	数值/cm <sup>-1</sup>
$\omega_e$	2358	$\gamma_e$	$-0.315 \times 10^{-4}$
$x_e \omega_e$	14.29	$D_e$	$0.5774 \times 10^{-5}$
$y_e \omega_e$	-0.0059	$\beta_e$	$0.155 \times 10^{-7}$
$z_e \omega_e$	-0.00024	$\delta_e$	0
$B_e$	1.998	$H_0$	$0.3 \times 10^{-11}$
$\alpha_e$	0.0173	$H_e$	$0.18 \times 10^{-11}$

### 2.1.3 拉曼线宽

拉曼线宽  $\Gamma$  可由 MEG (modified exponential gap) 模型计算. 由转动态  $i$  向上跃迁至转动态  $j$  ( $i < j$ ) 的碰撞弛豫矩阵  $\mathbf{\Gamma}$  的矩阵元  $\gamma_{ji}$  可由下式计算<sup>[31]</sup>:

$$\gamma_{ji} = nA_0 f(T) \left( \frac{T_0}{T} \right)^N \left[ \frac{1 + aE_i/(k_B T \delta)}{1 + aE_i/(k_B T)} \right]^2 \times \exp\left( \frac{-\beta \Delta E_{i,j}}{k_B T} \right), \quad (8a)$$

$$f(T) = \frac{1 - e^{-m}}{1 - e^{-mT/T_0}}, \quad (8b)$$

式中,  $n$  为气体数密度;  $A_0$ ,  $a$ ,  $m$ ,  $N$ ,  $\beta$ ,  $\delta$  均为常数;  $T_0$  为参考温度, 其值如表 2 所列<sup>[31]</sup>. 向下跃迁率可依据微观可逆性计算:

$$\gamma_{ij} = \frac{2J_i + 1}{2J_j + 1} \gamma_{ji} \exp\left( \frac{\Delta E_{i,j}}{k_B T} \right). \quad (9)$$

碰撞弛豫矩阵  $\mathbf{\Gamma}$  的对角矩阵元可通过对转动态  $j$  的所有碰撞跃迁求和以此来获得自展宽线宽:

$$\gamma_{jj} = \sum_{i \neq j} (\gamma_{ji} + \gamma_{ij}). \quad (10)$$

在低气体密度条件下, 碰撞弛豫矩阵  $\mathbf{\Gamma}$  的非对角矩阵元相对于对角矩阵元很小可忽略, 因此  $Q$  支谱线中来自于每个转动态  $J$  的线宽  $\Gamma_{J,J} = \gamma_{jj}$ .

表 2 MEG 模型中  $N_2$  分子所用参数

Table 2. Structural parameters of capillary of different kind of fluid.

参数	数值	参数	数值
$A_0$	$0.020 \text{ cm}^{-1} \cdot \text{amg}^{-1}$	$N$	-0.5
$T_0$	295 K	$\beta$	1.67
$a$	1.5	$\delta$	1.21
$m$	0.1487		

## 2.2 振转温度反演

实测 CARS 信号除受到温度、压力和组分等流场参数的影响外还受到激光器线宽、探测系统展宽等仪器参数的影响. 实测 CARS 信号可表示为

$$I_{\text{CARS}} = I_4(\omega) * L_1(\omega) * L_2(\omega) * L_3(\omega) * S(\omega), \quad (11)$$

式中,  $L_i(\omega)$  ( $i = 1, 2, 3$ ) 和  $S(\omega)$  分别表示泵浦光、斯托克斯光、探测光线型函数和探测系统的展宽函数.

实测 CARS 光谱是流场参数 (温度、压力、组分) 和仪器参数 (激光线型、探测仪器展宽等) 共同作用的结果, 在反演流场温度时需要综合考虑上述因素以及测量过程中的误差和噪声干扰.

利用多参数优化算法, 通过将实测光谱与理论计算光谱的偏差最小化可以确定出待测流场温度, 算法流程如图 2 所示. 考虑到 CARS 光谱特征以及不同跃迁带对温度敏感程度, 在此采用  $\chi^2$  作为多参数优化的目标函数:

$$\chi^2 = \sum_{i=1}^N \frac{1}{I_m(\lambda_i)} \left\{ I_m(\lambda_i) - [bI_{\text{th}}(\lambda_i - \Delta\lambda; T_v, T_r) * L(\lambda_i) + \Delta I] \right\}^2, \quad (12)$$

式中,  $I_m$  为实测 CARS 光谱;  $I_{\text{th}}$  为由 (1) 式计算的理论 CARS 光谱;  $L(\lambda_i)$  为综合光谱仪器、激光器线宽相关的线型函数;  $\Delta\lambda$ ,  $b$ ,  $\Delta I$  是与仪器非线性色散、光谱响应、测量误差等有关的自由参数.

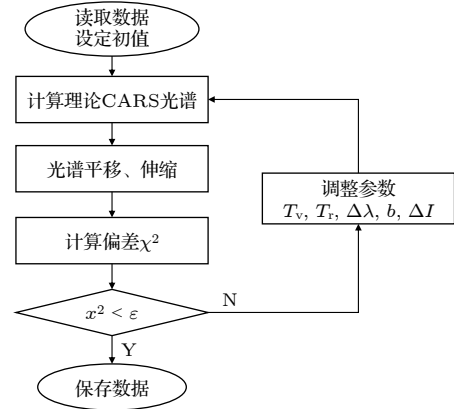


图 2 振转温度反演流程示意图

Fig. 2. Schematic diagram of vibrational-rotational temperature retrieval process.

## 3 实验及装置

非平衡等离子体振转温度 CARS 测量方案如图 3 所示. CARS 测温系统主要有泵浦光源、测量光路、光谱采集和时序控制四大模块组成, 其中泵浦光源包括中心波长为 532 nm、线宽  $\leq 1 \text{ cm}^{-1}$  的 Nd:YAG 激光和染料激光器组成, 532 nm 激光经分光后一束作为泵浦/探测光, 另一束作为染料激光器的泵浦光源用于产生中心波长为 607 nm、线宽不低于  $100 \text{ cm}^{-1}$  的斯托克斯光. 测量光路用于泵浦激光的整形、合束以及 CARS 信号的激发和收集, 泵浦/探测光经光束整形为环形光束后与斯托克斯光以非稳腔空间增强探测 (unstable-resonator spatially enhanced detection, USED) 的相位匹配方式聚焦于待测流场并激发流场中的目标组

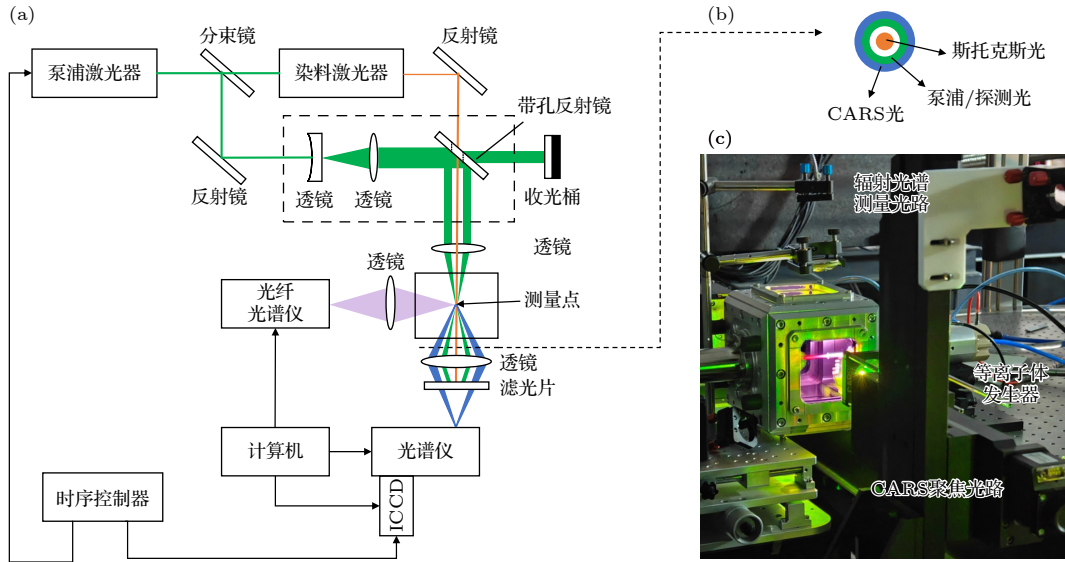


图 3 (a) CARS 测量系统示意图; (b) USED 相位匹配方式下各个光束的空间位置示意图; (c) 非平衡等离子体振转温度测量实验  
 Fig. 3. (a) Schematic diagram of the CARS measurement system; (b) schematic diagram of the spatial positions of various beams in the USED phase matching method; (c) experiment on the measurement of vibrational-rotational temperature of non-equilibrium plasma.

分产生 CARS 信号, 在 USED 相位匹配方式下各个光束的空间位置如图 3(b) 所示. 光谱采集模块由光栅光谱仪和光纤光谱仪构成, 其中光栅光谱仪 (配备 1200 lines/mm 闪耀光栅及 ICCD 阵列) 用于采集 CARS 信号, 测量过程中 ICCD 积分时间  $t_w = 100$  ns, 光谱仪入口狭缝宽度  $100 \mu\text{m}$ . 利用单纵模激光器可以对光谱仪展宽函数进行标定, 结果显示其展宽函数具有 Voigt 线型, 半高全宽为  $4.5 \text{ cm}^{-1}$ . 时序控制器用于泵浦光源和 ICCD 之间的同步触发.

非平衡等离子体振转温度测量实验基于微波等离子体搭建, 如图 3(c) 所示. 等离子体发生器为一微波等离子体源, 微波频率 2400—2500 MHz、微波功率 80—200 W 可调. CARS 测量系统的聚焦光路和收集光路分别置于等离子体两侧, 且焦点位于腔内等离子体炬出口中心处, 激发的 CARS 信号经收集光路滤除泵浦/探测光和斯托克斯光后利用光纤传输至光谱仪. CARS 测点正上方搭建有辐射光谱收集光路, 经光纤传输至光纤光谱仪. 腔体配有真空泵和压力计, 腔内最小压力可达 30 Pa.

## 4 结果及讨论

### 4.1 计算结果分析

基于上述 CARS 原理, 计算了不同振动温度

和转动温度下的拉曼线宽和 CARS 光谱, 结果如图 4 所示. 图 4(a) 为拉曼线宽随温度和转动量子数的演化关系, 相同温度下拉曼线宽随着转动量子数的增加而减小, 相同转动量子数下拉曼线宽随着温度的增加而减小, 并且温度对拉曼线宽的影响主要体现在低转动态上, 且这种影响随着转动量子数的增加而降低. 图 4(b) 为热力学平衡和非平衡时的理论 CARS 光谱, CARS 光谱由众多转动跃迁的分立谱线构成, 但由于仪器展宽效应 (包含激光器线宽以及探测系统的展宽作用), 最终由转动分辨的谱线变成仅能振动分辨的谱带. 图 4(c) 为不同转动温度 ( $T_v = 3000$  K) 下的理论 CARS 光谱, 随着转动温度的增加, 同一振动跃迁带的宽度随之增加. 这是由于转动温度增加导致高转动能级布居数增加, 导致由高转动态跃迁产生的谱线强度增加, 由于仪器展宽作用下转动谱线不可分辨进而使得转动谱带宽度增加. 图 4(d) 为不同振动温度 ( $T_r = 500$  K) 下的理论 CARS 光谱, 随着振动温度的增加, 不同振动跃迁带的相对强度发生变化. 这是由于振动温度增加导致高振动能级布居数增加, 导致由高振动态跃迁产生的谱线强度增加, 而由于转动温度较低, 不同振动能级下的转动谱线尚未发生交叠, 使得在仪器展宽后转动谱带的宽度基本保持不变.

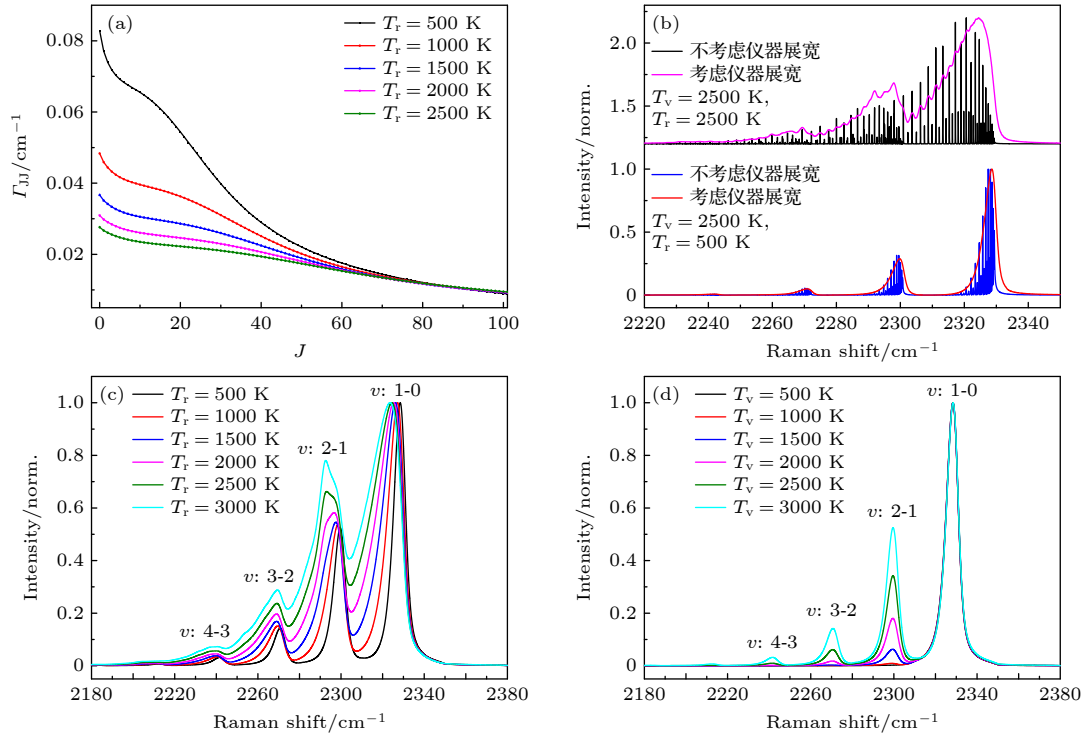


图 4 (a) 拉曼线宽计算结果; (b) 热力学平衡和非平衡时的理论 CARS 光谱; (c) 不同转动温度下的理论 CARS 光谱; (d) 不同振动温度下的理论 CARS 光谱

Fig. 4. (a) Calculation results of Raman linewidth; (b) theoretical spectra in thermodynamic equilibrium and non-thermodynamic equilibrium; (c), (d) theoretical spectra with different (c) rotational temperature and (d) vibrational temperature.

## 4.2 CARS 技术验证

为了验证技术可行性以及所开发算法的准确性, 基于高温管式炉和 McKenna 层流燃烧器开展了验证实验, 每个温度工况下采集 20 次 CARS 光谱并对其振转温度反演结果进行统计分析. 其中, 高温管式炉上开展了 1000—1700 K 范围内 7 个设定温度下 (设定温度间隔 100 K) 的振转温度测量并与管式炉设定值进行对比; McKenna 用于构建 1700—2300 K 范围内的高温环境, 结合稳焰器可产生具有稳定结构的层流火焰, 并且在平面火焰炉

外围通氮气以稳定中心流场, 防止火焰外围与空气反应而干扰火焰状态影响测量结果. 测量位置位于平面火焰炉上方 15 mm 处. 通过调节  $\text{CH}_4$  和空气当量比可以调控火焰温度.

不同验证实验参数及测量结果如表 3 所列,  $T_{\text{ref}}$  为相同工况下 DLR (德国宇航中心) 1200 次测量的统计结果 (不确定度为 2.5%)<sup>[32]</sup>,  $T_{\text{eq}}$  表示热平衡假设 ( $T_v = T_r = T_{\text{eq}}$ , 即用同一的  $T_{\text{eq}}$  来代替 (3) 式中的  $T_v$  和  $T_r$ ) 下 20 次测量统计结果,  $T_v$  和  $T_r$  分别表示振动温度  $T_v$  和转动温度  $T_r$  多次测

表 3 验证实验工况

Table 3. Test conditions for different cases.

Case	流量/(L·min <sup>-1</sup> )			$T_{\text{ref}}/\text{K}$	$T_{\text{eq}}/\text{K}$	$T_v/\text{K}$	$T_r/\text{K}$
	$\text{CH}_4$	Air	$\text{O}_2$				
1	1.100	15.00	—	1706	1713±27	1634±41	1691±66
2	1.420	15.00	—	1799	1800±27	1675±40	1772±58
3	2.287	15.00	—	1915	1920±19	1726±29	1822±43
4	2.550	24.14	—	2009	2040±35	1977±29	2090±47
5	3.420	32.40	—	2100	2092±35	2051±47	2174±63
6	4.480	28.32	3.02	—	2267±26	2169±46	2295±67
7	4.930	26.67	4.21	—	2302±65	2261±41	2457±68

量的统计结果. 1000—2300 K 范围内的验证结果如图 5 所示, 结果显示振动温度  $T_v$  与平衡温度  $T_{eq}$  最大相对偏差和平均相对偏差分别为 10.10% 和 4.28%、最大重复性 (标准差与均值之比来表征) 和平均重复性分别为 2.69% 和 1.95%, 转动温度  $T_r$  与平衡温度  $T_{eq}$  最大相对偏差和平均相对偏差分别为 6.73% 和 3.34%、最大重复性 (标准差与均值之比来表征) 和平均重复性分别为 4.01% 和 3.03%, 表明非平衡算法获取的振转温度和热平衡算法下获取的温度具有较好的一致性.

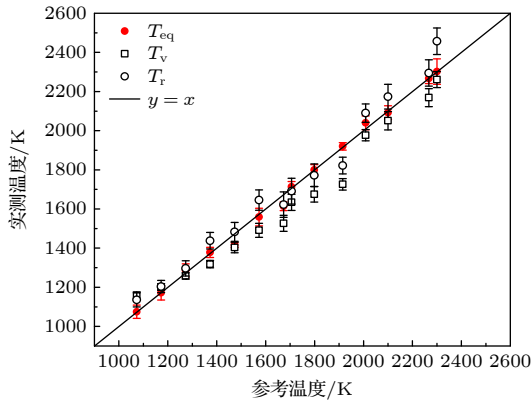


图 5 宽范围振转温度验证结果

Fig. 5. Measurement results of vibrational and rotational temperature in wide-range.

### 4.3 非平衡等离子体振转温度测量

基于上述搭建的非平衡等离子体 CARS 实验平台, 开展了 80—180 W 不同微波功率下的等离子体流场 CARS 测温实验, 每个功率条件测量 10 次并进行统计分析. 实验过程中保持腔内压力 3000 Pa、微波频率 2.450 GHz, 实验气体为  $N_2$ , 流量为 1 L/min. 利用开发的 CARS 光谱计算及振转温度反演算法, 通过拟合实测 CARS 光谱和理论 CARS 光谱获取了等离子体流场振动温度和转动温度, 结果如图 6 和图 7 所示. 图 6(a) 为微波功率 140 W 条件下单次实测 CARS 光谱、拟合结果及拟合残差, 残差最大值和平均值为 0.0556 和 0.0134, 表明实测光谱与理论光谱拟合很好, 拟合结果显示振动温度为 2410 K、转动温度为 471 K; 图 6(b) 为微波功率 140 W 条件下 10 次测量结果的统计分布 ( $T_v = (2417 \pm 62)$  K,  $T_r = (485 \pm 28)$  K), 从统计直方图可看出, 振动温度和转动温度的统计差异非常显著, 结果表明微波等离子体流场处于热力学非平衡状态.

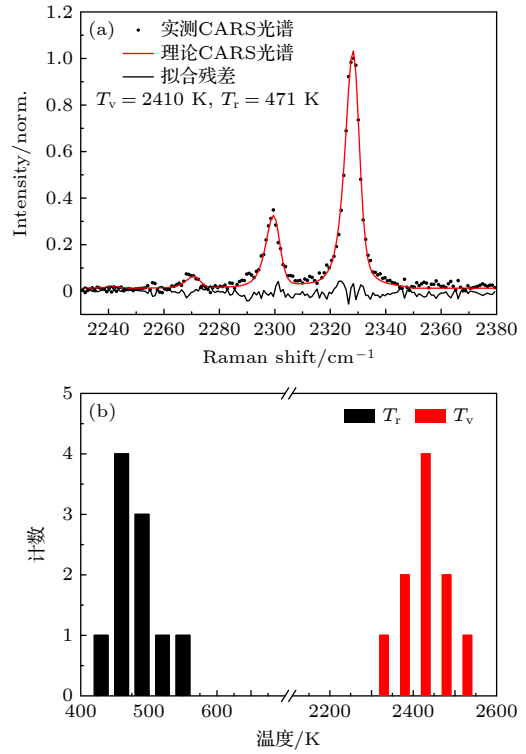


图 6 (a) 实测 CARS 光谱及振转温度反演结果; (b) 振转温度统计分布

Fig. 6. (a) Measurement CARS spectrum and corresponding fitting results; (b) statistical distributions of vibrational and rotational temperature.

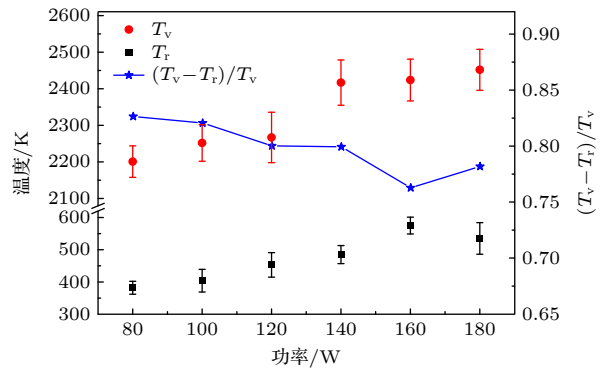


图 7 不同微波功率下的振转温度

Fig. 7. Vibrational and rotational temperatures in different microwave power.

图 7 为不同微波功率下的振动温度、转动温度, 结果显示, 振动温度和转动温度都与微波功率成正比, 当微波功率从 80 W 增加至 180 W 时, 等离子体振动温度从  $(2201 \pm 43)$  K 增加至  $(2452 \pm 56)$  K、转动温度从  $(382 \pm 20)$  K 增加至  $(535 \pm 49)$  K. 为了描述不同微波功率下的等离子体热力学非平衡度, 在此采用  $\theta = (T_v - T_r)/T_v$  来表征,  $\theta = 0$  表明等离子体处于热力学平衡状态即  $T_v = T_r$ ,  $\theta < 0$

表明振动温度低于转动温度即  $T_v < T_r$ ,  $\theta > 0$  表明振动温度高于转动温度即  $T_v > T_r$ . 结果显示  $\theta$  与微波功率成反比, 当微波功率从 80 W 增加至 180 W 时, 等离子体热力学非平衡度从 0.83 降低至 0.78, 即等离子体趋于热力学平衡状态. 其主要原因可能在于微波功率的增加导致电子数密度增加<sup>[33]</sup>, 中性粒子通过与电子碰撞获得能量从而导致内能 (包括转动能、转动能) 和平动能增加进而导致振动温度、转动温度和平动温度升高; 另一方面, 处于振动激发态的分子通过与基态分子的碰撞损失能量 (即 V-T 弛豫过程) 导致部分振动能会转化为平动能, 且对于  $N_2$  分子 V-T 弛豫速率<sup>[34]</sup>

$$k_{10} = 7.8 \times 10^{-12} \cdot T \cdot \exp\left(-\frac{218}{T^{1/3}} + \frac{690}{T}\right) \times \left[1 - \exp\left(-\frac{E_{10}}{T}\right)\right]^{-1}$$

与温度成正比, 即温度越高分子通过 V-T 弛豫损失能量越大, 最终导致振动温度与转动温度的差异随着微波功率的增加而降低, 即非平衡度随着微波功率的增加而减小.

## 5 结 论

本文基于 CARS 技术基本原理结合 MEG 模型开发了面向非平衡流场振转温度测量的 CARS 光谱计算及振转温度反演算法, 开展了非平衡等离子体 CARS 测温实验. 宽范围内的验证实验表明, 开发的振转温度反演算法具有较好的准确性, 振转温度测量结果与热平衡态测温结果具有很好的一致性. 基于上述振转温度反演算法和搭建的等离子体 CARS 实验平台, 获取了不同微波功率下的等离子体振转温度, 结果显示微波等离子体处于热力学非平衡状态, 并且振动温度和转动温度与微波功率成正比, 当微波功率从 80 W 增加至 180 W 时, 等离子体振动温度从  $(2201 \pm 43)$  K 增加至  $(2452 \pm 56)$  K、转动温度从  $(382 \pm 20)$  K 增加至  $(535 \pm 49)$  K; 而热力学非平衡度与微波功率成反比, 当微波功率从 80 W 增加至 180 W 时, 等离子体热力学非平衡度从 0.83 降低至 0.78. 其主要原因一方面在于微波功率的增加导致电子数密度增加, 中性粒子通过与电子碰撞获得能量从而导致振动温度、转动温度和平动温度升高; 另一方面, 处于振动激发态的分子通过与基态分子的碰撞损失能量 (即 V-T 弛

豫过程) 导致部分振动能会转化为平动能, 且对于  $N_2$  分子 V-T 弛豫速率与温度成正比, 这将导致振动温度与转动温度的差异随着微波功率的增加而降低, 非平衡度随着微波功率的增加而减小.

感谢浙大城市学院计算机与计算科学学院向正哲副教授在模拟退火算法方面提供的帮助.

## 参考文献

- [1] Jiang Z L, Li J P, Hu Z M, Liu Y F, Yu H R 2018 *Chin. J. Theor. Appl. Mech.* **50** 1283 (in Chinese) [姜宗林, 李进平, 胡宗民, 刘云峰, 俞鸿儒 2018 *力学学报* **50** 1283]
- [2] Knisely C P, Zhong X L 2020 *AIAA J.* **58** 1704
- [3] Chen X L, Wang L, Fu S 2021 *Phys. Fluids* **33** 034132
- [4] Yang X F, Gui Y W, Xiao G M, Du Y X, Liu L, Wei D 2020 *Int. J. Heat Mass Transfer* **146** 118869
- [5] Chen X H, Chen F, Zhang S T, Liu H 2016 *44th AIAA Aerospace Sciences Meeting San Diego, USA, January 4-8, 2016* p1252
- [6] Li W J, Huang J, Zhang Z W, Wang L Y, Huang H M, Liang J 2021 *Acta Astronaut.* **183** 101
- [7] Park C 2013 *Int. J. Aeronaut. Space Sci.* **14** 1
- [8] Holden M S, Wadhams T P, MacLean M, Dufrene M, Mundy E 2012 *50th AIAA Aerospace Science Meeting including the New Horizons Forum and Aerospace Exposition Nashville, Tennessee, January 9-12, 2012* p469
- [9] Park C 2009 *J. Thermophys. Heat Transfer* **23** 417
- [10] Matsuyama S, Ohnishi N, Sasoh A, Sawada K 2005 *J. Thermophys. Heat Transfer* **19** 28
- [11] Niu Q L, He Z H, Dong S K 2016 *Chin. J. Aeronaut.* **29** 1367
- [12] Furudate M, Nonaka S, Sawada K 1999 *J. Thermophys. Heat Transfer* **13** 424
- [13] Winter M W, Srinivasan C, Charnigo R 2015 *46th AIAA Plasma dynamics and Lasers Conference Dallas, USA, June 22-26, 2015* p2963
- [14] Lü J M, Li F, Lin X, Cheng X L, Yu X L, Yu J J 2019 *J. Exp. Fluid Mech.* **33** 25 (in Chinese) [吕俊明, 李飞, 林鑫, 程晓丽, 余西龙, 俞继军 2019 *实验流体力学* **33** 25]
- [15] Zeng H, Yu X L, Li F, Zhang S H 2015 *J. Exp. Fluid Mech.* **29** 79 (in Chinese) [曾徽, 余西龙, 李飞, 张少华 2015 *实验流体力学* **29** 79]
- [16] Sharma S P, Ruffin S M, Gillespie W D, Meyer S A 1992 *27th Thermophysics Conference Nashville, USA, July 6-8, 1992* p2855
- [17] Takayanagi H, Mizuno M, Fujii K, Suzuki T, Fujita K 2009 *41st AIAA Thermophysics Conference San Antonio, USA, June 22, 2009* p4241
- [18] Grisch F, Bouchardy P, Péalat M 1993 *23rd Fluid Dynamics, Plasmadynamics and Lasers Conference Orlando, USA, July 6, 1993* p3047
- [19] Grisch F, Bouchardy P, Joly V, Marmignon C, Koch U, Gülhan A 2000 *AIAA J.* **38** 1669
- [20] Kim M, Koch U, Esser B, Koch U 2011 *42nd AIAA Thermophysics Conference Honolulu, USA, June 27, 2011* p3777
- [21] Gülhan A, Esser B, Koch U, Fischer M, Magens E,

- Hannemann V 2018 *AIAA J.* **56** 1072
- [22] Dogariu A, Dogariu L, Smith M S, Lafferty J, Miles R B 2019 *AIAA SciTech Forum* San Diego, USA, January 7–11, 2019 p1089
- [23] Dogariu A, Dogariu L, Smith M S, McManamen B, Lafferty J F, Miles R B 2021 *AIAA SciTech Forum* January 11–15 & 19–21, Virtual Event, 2021 p0020
- [24] Montello A, Nishihara M, Rich J W, Adamovich I V, Lempert W R 2012 *50th AIAA Aerospace Sciences Meeting including the New Horizons Forum and Aerospace Exposition* Nashville, USA, January 9–12, 2012 p0239
- [25] Tian Z Y, Zhao H J, Wei H Y, Li Y 2021 *Acta Phys. Sin.* **70** 214203 (in Chinese) [田子阳, 赵会杰, 尉昊赟, 李岩 2021 物理学报 **70** 214203]
- [26] Yang W B, Qi X H, Ye J W, Li M, Zhou J N, Chen S, Mu J H 2020 *Proc. of SPIE, Global Intelligent Industry Conference* Guangzhou, China, October 22–24 p11780L
- [27] Huang A, Xu Z Y, Deng H, Yang W B, Qi X H, Li J, Kan R F 2023 *Microwave Opt. Technol. Lett.* **66** 1
- [28] Hu Z Y, Liu J R, Ye J F, Zhang Z R, Tao B, Zhang L R 2012 *2nd International Symposium on Laser Interaction with Matter* Xi'an China, May 16, 2013 87961G
- [29] Zhang H 2009 *Ph. D. Dissertation* (Harbin: Harbin Institute of Technology) (in Chinese) [张虎 2009 博士学位论文 (哈尔滨: 哈尔滨工业大学)]
- [30] Dedic C E 2017 *Ph. D. Dissertation* (Ames: Iowa State University)
- [31] Rahn L, Palmer R 1986 *J. Opt. Soc. Am. B* **3** 1164
- [32] Weigand P, Rainer L, Meier W 2003 <http://www.dlr.de/VT/Datenarchiv>
- [33] Xiao W, Zeng X Y, Zhu H C, Huang K M 2018 *Vac. Electron.* **1** 48
- [34] Capitelli M, Ferreira C M, Gordiets, Osipov A I 2000 *Plasma Kinetics in Atmospheric Gases* (Berlin: Springer Press) pp106, 107

# Coherent anti-Stokes Raman scattering spectral calculation and vibrational-rotational temperature measurement of non-equilibrium plasma flow field\*

Yang Wen-Bin<sup>1)</sup> Zhang Hua-Lei<sup>1)2)</sup> Qi Xin-Hua<sup>1)†</sup> Che Qing-Feng<sup>1)</sup>  
 Zhou Jiang-Ning<sup>1)</sup> Bai Bing<sup>1)3)</sup> Chen Shuang<sup>1)</sup> Mu Jin-He<sup>1)</sup>

1) (*Facility Design and Instrumentation Institute, China Aerodynamic Research and Development Center, Mianyang 621000, China*)

2) (*Aviation University of Air Force, Changchun 130012, China*)

3) (*College of Physics and Optoelectronic Engineering, Harbin Engineering University, Harbin 150001, China*)

( Received 2 April 2024; revised manuscript received 28 May 2024 )

## Abstract

How to characterize thermodynamic non-equilibrium characteristics of flow field accurately and reliably is the key to solving the thermal and chemical non-equilibrium problem, which is one of the most basic scientific problems in hypersonic aerodynamics. Based on the principles of coherent anti-Stokes Raman scattering (CARS) and modified exponential gap (MEG) Raman linewidth model, a CARS spectral computation and vibrational-rotational temperature inversion program is proposed for characterizing the thermodynamic non-equilibrium properties of high-temperature gas flow field. The influence of vibrational temperature and rotational temperature on Raman linewidth and CARS spectral characteristics are studied theoretically. A CARS system is built and the corresponding accuracy in a wide temperature range is verified in a static environment that is established by using a high-temperature tube furnace and a McKenna burner. The results show that the average relative deviation of the vibration temperature  $T_v$  and rotational temperature  $T_r$  from the equilibrium temperature  $T_{eq}$  are 4.28% and 3.34% respectively in a range of 1000 to 2300 K, and the corresponding average repeatability is 1.95% and 3.03% respectively. These results indicate that the vibrational temperature and rotational temperature obtained by the non-equilibrium program are in good agreement with those obtained from the thermal equilibrium program. Finally, a non-equilibrium microwave plasma flow is built and its vibrational temperature and rotational temperature are obtained by using the developed program. The results show that the microwave plasma is in thermodynamic non-equilibrium, and the vibrational temperature and rotational temperature are proportional to microwave power, while the thermodynamic non-equilibrium degree exhibits an opposite trend. With microwave power increasing from 80 to 180 W, the vibrational temperature of plasma increases from  $(2201 \pm 43)$  K to  $(2452 \pm 56)$  K, the rotational temperature increases from  $(382 \pm 20)$  K to  $(535 \pm 49)$  K, for which the principal reasons are that the increase in microwave power leads to an increase in electron number density, and neutral particles obtain energy through collision with electrons, resulting in the increase of vibrational temperature, rotational temperature, and translational temperature. The thermodynamic non-equilibrium degree decreases from 0.83 to 0.78 with the microwave power increasing, which is due to the V-T relaxation rate increasing. The molecules in the excited vibrational states lose energy through collision with ground state molecules (i.e. V-T relaxation process), leading the vibrational energy to be converted into translational energy. For  $N_2$  molecules, the V-T relaxation rate is directly proportional to the temperature, which causes the difference between vibrational temperature and rotational temperature to decrease with microwave power increasing, and non-equilibrium degree to decrease with microwave power increasing as well.

**Keywords:** thermodynamic non-equilibrium, vibrational temperature, rotational temperature, coherent anti-Stokes Raman scattering

**PACS:** 42.65.Dr, 52.70.-m, 47.80.Fg, 33.20.-t

**DOI:** 10.7498/aps.73.20240455

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 12202478).

† Corresponding author. E-mail: [qxh\\_78@sina.com](mailto:qxh_78@sina.com)

非平衡等离子体流场相干反斯托克斯拉曼散射光谱计算及振转温度测量

杨文斌 张华磊 齐新华 车庆丰 周江宁 白冰 陈爽 母金河

**Coherent anti-Stokes Raman scattering spectral calculation and vibrational-rotational temperature measurement of non-equilibrium plasma flow field**

Yang Wen-Bin Zhang Hua-Lei Qi Xin-Hua Che Qing-Feng Zhou Jiang-Ning Bai Bing Chen Shuang  
Mu Jin-He

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 73, 154202 (2024) DOI: 10.7498/aps.73.20240455

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.73.20240455>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

## 您可能感兴趣的其他文章

### Articles you may be interested in

基于混合飞秒/皮秒相干反斯托克斯拉曼散射的动态高温燃烧场温度测量

Thermometry in dynamic and high-temperature combustion field based on hybrid femtosecond/picosecond coherent anti-Stokes Raman scattering

物理学报. 2021, 70(21): 214203 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20211144>

利用数值模拟研究表面增强相干反斯托克斯拉曼散射增强基底

Numerical simulation study of surface enhancement coherent anti-Stokes Raman scattering reinforced substrate

物理学报. 2021, 70(10): 104207 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20201773>

基于抽运-探测法的皮秒反斯托克斯拉曼频移器的理论研究

Theoretical study of picosecond anti-Stokes Raman frequency converter based on pump-probe method

物理学报. 2021, 70(9): 094202 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20201353>

基于拉曼散射光动态校准的分布式光纤温度传感系统

Distributed fiber optic temperature sensor based on dynamic calibration of Raman Stokes backscattering light intensity

物理学报. 2022, 71(20): 200701 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220611>

双温度氩-氮等离子体热力学和输运性质计算

Calculation of two-temperature thermodynamic and transport properties of argon-nitrogen plasma

物理学报. 2021, 70(8): 085201 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20202040>

超强激光在均匀等离子体中的背向拉曼散射放大机制

Amplification mechanism in stimulated Raman backward scattering of ultraintense laser in uniform plasma

物理学报. 2022, 71(5): 055202 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20211270>