

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

田子阳 赵会杰 尉昊赞 李岩

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

Tian Zi-Yang Zhao Hui-Jie Wei Hao-Yun Li Yan

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 70, 214203 (2021) DOI: 10.7498/aps.70.20211144

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.70.20211144>

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

双光子荧光与相干反斯托克斯拉曼散射显微成像技术的实验研究

Experimental study on two-photon fluorescence and coherent anti-Stokes Raman scattering microscopy

物理学报. 2017, 66(10): 104204 <https://doi.org/10.7498/aps.66.104204>

基于光强传输方程相位成像的宽场相干反斯托克斯拉曼散射显微背景抑制

Nonresonant background suppression in wide-field Coherent anti-Stokes Raman scattering microscopy with transport of intensity equation based phase imaging

物理学报. 2017, 66(11): 114206 <https://doi.org/10.7498/aps.66.114206>

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>

液相硝基甲烷分子振动特性的相干反斯托克斯拉曼散射光谱

Coherent anti-Stokes Raman scattering spectrum of vibrational properties of liquid nitromethane molecules

物理学报. 2018, 67(2): 024208 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20171828>

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>

用于CARS激发源的全光纤飞秒脉冲谱压缩

All-fiber spectral compression of femtosecond pulse for coherent anti-Stokes Raman scattering excitation source

物理学报. 2017, 66(20): 204207 <https://doi.org/10.7498/aps.66.204207>

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*

田子阳 赵会杰 尉昊赞 李岩†

(清华大学精密仪器系, 精密测试技术及仪器国家重点实验室, 北京 100084)

(2021年6月17日收到; 2021年7月2日收到修改稿)

温度测量对燃烧过程中的污染控制与节能减排具有重要意义, 而实际应用中复杂的动态高温燃烧场对温度测量技术的测量精度与响应速度提出了严格的要求. 相干反斯托克斯拉曼散射技术作为一种较为先进的光谱测温技术, 具有较高的空间分辨率, 可以在高温环境下实现准确的温度测量, 具有应用于复杂燃烧场的潜力. 针对复杂的动态高温燃烧场的测温需求, 本文提出了一种基于二次谐波带宽压缩方法的混合飞秒/皮秒相干反斯托克斯拉曼散射测温方法, 实现了对动态高温燃烧场温度的准确测量与动态响应. 实验中利用标准燃烧器模拟了 1700—2200 K 温度范围内的动态高温燃烧场, 利用该测温方法, 以千赫兹的光谱采集速率, 对模拟的动态火焰的温度进行了连续 70 s 测量. 测量结果显示, 该方法在高温下温度测量的相对误差小于 1.2%, 相对标准偏差小于 1.8%, 同时能动态追踪 0.2 s 内的温度变化过程, 验证了该方法测温的准确性、稳定性以及响应速度, 为复杂的动态高温燃烧场的温度测量提供了一种新的测量方案.

关键词: 相干反斯托克斯拉曼散射, 温度测量, 动态测量**PACS:** 42.65.Dr, 42.62.Fi, 47.80.Fg**DOI:** 10.7498/aps.70.20211144

1 引言

温度作为燃烧诊断过程中的重要参数, 会直接影响燃烧效率与燃烧产物的生成. 准确检测燃烧温度进而调控燃烧状态, 不仅有助于避免如 CO, NO_x 等有害废气的产生, 同时可以提高燃烧效率, 节约能源^[1,2]. 然而实际应用中的燃烧场多是动态高温状态, 这种复杂燃烧场对温度测量方法的时间分辨率、空间分辨率、准确度、稳定度以及响应速度均提出了挑战, 因此以热电偶为代表的传统的侵入式测温方法难以满足实际复杂燃烧场的测温需求^[3].

相干反斯托克斯拉曼散射 (coherent anti-Stokes Raman scattering, CARS) 技术最早由 Moya 等^[4] 在 1975 年应用于气体温度测量, 是一种较为

先进的光谱测温技术, 具有非侵入式、空间分辨率高、信号便于收集等优点, 该方法在高温下测温的准确性已经得到了充分的验证^[5-7]. 然而传统的纳秒 CARS 测温技术受限于激光器性能, 重复频率仅有 10 Hz 左右^[8], 不适用于快速动态的温度测量, 同时纳秒 CARS 测温技术会受到非共振背景的干扰, CARS 信号与非共振背景信号混叠在一起, 导致温度拟合变得更加困难. 而在纳秒 CARS 基础上发展的皮秒 CARS 测温技术虽然通过延迟探测脉冲避免了非共振背景干扰^[9,10], 但是皮秒 CARS 技术信号的有效激发需要较高的单脉冲能量, 一般为上百毫焦, 而通常高能量的皮秒激光器的重复频率被限制在 10—50 Hz 范围内, 因此皮秒 CARS 测温技术的重复频率也仅有 10—50 Hz, 动态测量能力十分有限^[11,12]. 同时皮秒 CARS 测温无法忽

* 国家重点研发计划 (批准号: 2020YFB2010701, 2020YFC2200101) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: liyan@mail.tsinghua.edu.cn

略分子碰撞带来的影响^[12,13], 建模过程十分复杂. 这些因素都限制了纳秒以及皮秒 CARS 测温技术 在高温、湍流等实际环境下的测量精度与响应速度. 因此, 随着近年来飞秒激光技术的进步与成熟, 飞秒激光器所具有的高重频、高峰值功率以及宽线宽等特点, 推动飞秒 CARS 技术逐渐成为主流的 CARS 测温技术.

飞秒 CARS 测温技术根据原理的不同可大致分为 3 种, 即时间分辨飞秒 CARS, 啁啾探测脉冲 (chirped probe pulse, CPP) 飞秒 CARS 以及混合飞秒/皮秒 CARS. 时间分辨飞秒 CARS 测温技术需要利用机械位移台进行延时扫描探测^[14–16], 单次温度的测量时间取决于位移台的扫描速度, 适用于稳定温度的测量, 无法满足实际环境下动态测量的需要; 而 CPP 飞秒 CARS 测温技术需要在光路中加入玻璃棒^[17,18], 脉冲的功率受限于玻璃棒的损伤阈值, 从而限制了产生的 CARS 信号的强度, 导致高温情况下信号容易被淹没在噪声中, 同时 CPP 飞秒 CARS 的模型较为复杂, 参数计算可能需要数天时间^[19], 因此 CPP 飞秒 CARS 测温技术在实际应用中局限较大; 混合飞秒/皮秒 CARS 技术则是利用飞秒激光作为激发光, 皮秒激光作为探测光, 从而可以在单脉冲内分辨分子精细的振动与转动跃迁结构^[20–23], 是目前较为前沿的 CARS 测温技术, 更有潜力应用于高温、变化的复杂燃烧场的温度测量中, 然而目前该技术在高温动态燃烧场中的应用与研究相对较少^[24].

本文报道了一种采用二次谐波带宽压缩方法^[25,26]的混合飞秒/皮秒 CARS 测温方法, 利用飞秒脉冲在 BBO 晶体中的和频过程所获得的窄带高能皮秒脉冲作为探测脉冲, 在高温火焰中实现了千赫兹、单脉冲的温度测量. 针对实际应用中高温动态的复杂燃烧场, 本文利用标准燃烧器通过快速改变甲烷/空气的流速配比, 模拟了 1700–2200 K 温度范围内的动态高温火焰. 在实验中, 利用该测温方法, 以千赫兹的光谱采集速率, 在模拟的动态高温火焰中进行了连续 70 s 测量, 验证了该方法在高温动态环境下测温的准确性、稳定性与响应速度.

2 基本原理与理论模型

2.1 CARS 基本原理

CARS 属于三阶非线性效应中的四波混频效

应, 其能级跃迁过程见图 1, 当泵浦光 (ω_1) 与斯托克斯光 (ω_2) 的频率差 ($\omega_1 - \omega_2$) 等于介质分子的拉曼共振频率 ω_R 时, 介质分子本征的振动或转动得到共振增强, 此时探测光 (ω_3) 入射, 产生向高频方向偏移的 CARS 信号 (ω_4). CARS 的过程满足动量守恒与能量守恒, 即 $\mathbf{k}_4 = \mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2 + \mathbf{k}_3$, $\omega_4 = \omega_1 - \omega_2 + \omega_3$, 其中 $\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2, \mathbf{k}_3, \mathbf{k}_4$ 与 $\omega_1, \omega_2, \omega_3, \omega_4$ 分别为泵浦光、斯托克斯光、探测光以及 CARS 信号所对应的波矢与中心频率.

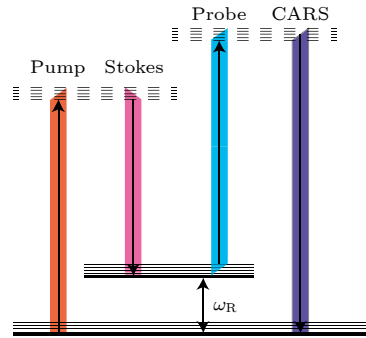


图 1 能级跃迁示意图

Fig. 1. Diagram of energy level transitions.

动量守恒条件的存在对 CARS 过程的空间相位匹配提出了严格的要求, 目前常见的 CARS 信号的空间相位匹配方式如图 2(a)–(c) 所示. 图 2(a) 为共线式相位匹配, 多用于生化样品分析或均匀气体中, 其空间分辨率较低, 不适用于燃烧场温度测量. 图 2(b) 为 Eckbreth^[27] 提出的 BOXCARS 的相位匹配方式, 3 束入射光与 CARS 信号以不同的角度在空间上分离, 从而获得了较高的空间分辨率. 在 BOXCARS 的基础上, 研究者进一步提出了折叠式 BOXCARS 的相位匹配方式^[28], 如图 2(c) 所示, 通过将入射光与 CARS 信号的波矢分布在垂直于传播方向的两个平面内, 进一步提高了 CARS 过程的空间分辨率, 是目前 CARS 测温领域中最常用的相位匹配方式, 本文使用的相位匹配方式便是折叠式 BOXCARS.

2.2 CARS 理论模型

CARS 信号的强度正比于三阶非线性极化率模的平方, 而三阶非线性极化率由共振和非共振两部分组成^[29], 故 CARS 信号的强度可表示为

$$I_{\text{CARS}} = \left| P_{\text{res}}^{(3)}(\omega) + P_{\text{nonres}}^{(3)}(\omega) \right|^2. \quad (1)$$

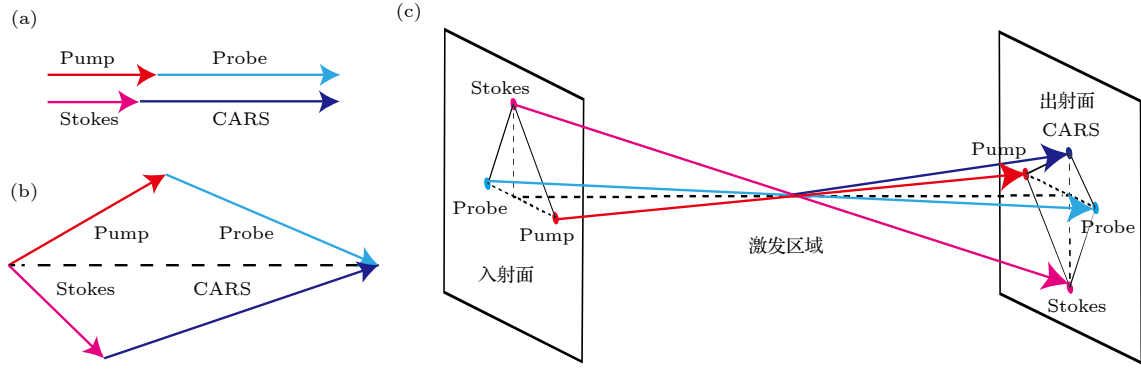


图 2 (a) 共线式相位匹配图; (b) BOXCARS 相位匹配图; (c) 折叠式 BOXCARS 相位匹配图

Fig. 2. (a) Diagram of collinear phase matching; (b) diagram of BOXCARS phase matching; (c) diagram of folded BOXCARS phase matching.

在混合飞秒/皮秒 CARS 方法中, 可以通过调节探测光相对于泵浦光和斯托克斯光的时间延迟抑制非共振背景, 因此非共振部分在理论计算时可以忽略. 而共振极化率的时域表达式为

$$P_{\text{res}}^{(3)}(t, \tau_{12}, \tau_{23}) = \left(\frac{i}{\hbar}\right)^3 E_3(t) \int_0^\infty dt_2 [R(t_2) E_2^*(t + \tau_{23} - t_2) \times E_1(t + \tau_{23} + \tau_{12} - t_2) e^{i(\omega_1 - \omega_2)t_2}], \quad (2)$$

式中 P_{res} 为共振极化率; E_1, E_2, E_3 分别为泵浦光、斯托克斯光以及探测光的时域电场包络; t 为时间; t_2 为相干作用时间; τ_{12} 和 τ_{23} 分别是泵浦光相对于斯托克斯光以及探测光相对于激发光的时间延迟; ω_1 和 ω_2 为泵浦光和斯托克斯光的频率; $R(t)$ 是分子响应函数. CARS 理论建模最主要的过程就是对于分子响应函数的计算, 分子响应函数 $R(t)$ 可表示为^[29]

$$R^{(4)}(t) \propto \sum_{n,m} \left(\frac{\partial \sigma}{\partial \Omega}\right)_j \Delta \rho_{nm}(T) e^{-i\omega_{nm}t - \Gamma_{nm}(P,T)t}, \quad (3)$$

其中 n, m 代表分子跃迁的低能级和高能级, $\left(\frac{\partial \sigma}{\partial \Omega}\right)_j$ 是拉曼散射截面, $\Delta \rho_{nm}$ 是跃迁能级之间的粒子数分布之差, ω_{nm} 是跃迁能级之间的频率差, Γ_{nm} 是拉曼线宽. 拉曼散射截面^[30,31]、粒子数差^[30,32]、频率差^[29,30,33]以及拉曼线宽^[34,35]的计算模型都已经较为成熟, 且参考文献较多, 代入理论温度与压强就可以完成计算.

将计算得到的频率差、粒子数差、拉曼散射截面以及拉曼线宽代入分子响应函数的公式(3)中, 可以得到分子响应函数在时域的曲线, 而进一步

在(2)式中, 将分子响应函数与泵浦光和斯托克斯光电场包络的乘积做卷积计算, 之后再乘上探测光电场包络, 可以得到分子的共振非线性极化率, 而时域 CARS 信号强度等于非线性极化率幅值的平方, 最后将时域 CARS 信号强度做傅里叶变换即可得到理论计算的 CARS 光谱.

本文选择氮气 (N_2) 分子作为 CARS 探测的目标分子, 这是由于一方面 N_2 分子在大部分燃烧环境中大量存在, 另一方面氮气分子的理论模型较为完善, 便于理论建模与温度拟合.

3 实验系统

3.1 CARS 光路系统

混合飞秒/皮秒 CARS 测温系统如图 3 所示, 飞秒激光器 (Astrella, Coherent) 作为整个系统的光源, 产生中心波长在 795 nm, 重复频率为 1 kHz, 脉宽约为 35 fs 的近似变换极限的高斯脉冲, 脉冲能量约为 6 mJ. 入射光经过分光镜 BS1 后, 约 50% 的光发生反射, 泵浦 OPA (OPerA Solo, Coherent) 装置, 产生中心波长在 670 nm 的飞秒激光, 作为 CARS 过程的泵浦光. 经过第 1 个分光镜 BS1 后的透射部分, 经过分光镜 BS2 后再次被分为两路, 其中透射光部分作为 CARS 过程的斯托克斯光, 电动位移台 1 用于调节泵浦光和斯托克斯光在时域上的重合, 保证激发效率最大.

经过分光镜 BS2 后的反射光部分经过 1 个 4f 系统, 在柱面透镜 CL2 后被分光镜 BS3 分为两路, 两路光分别经过放置于柱面透镜 CL2 焦点前 d 距离和焦点后 d 距离位置的光栅 G2 和 G3, 从而在两路光中分别引入相等的正负线性啁啾. 图 3 中

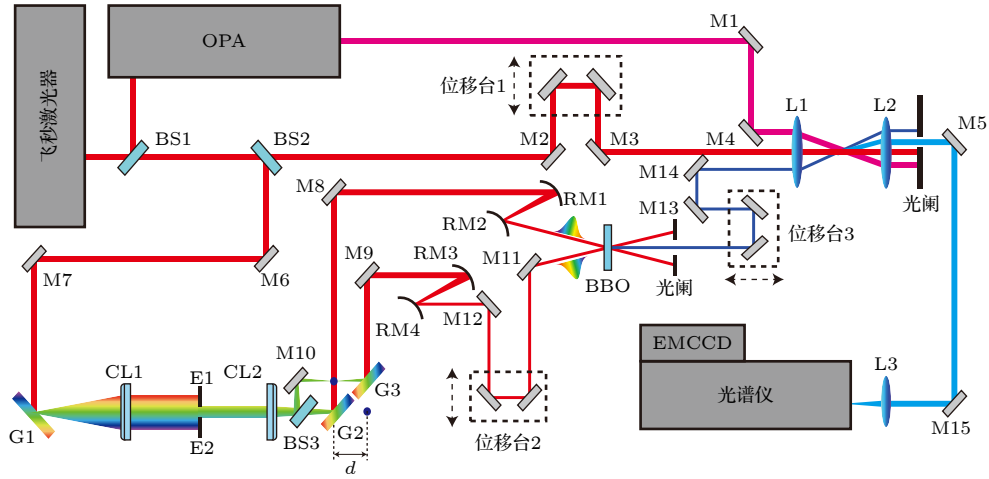


图 3 混合飞秒皮秒 CARS 光路系统图. BS1—BS3, 分光镜; M1—M15, 反射镜; G1—G3, 光栅; CL1 和 CL2, 柱面透镜; RM1 和 RM3, 凸面反射镜; RM2 和 RM4, 凹面反射镜; E1 和 E2, 直边; L1—L3, 透镜; OPA, 光学参量放大器; EMCCD, 电子倍增电荷耦合器件

Fig. 3. Diagram of hybrid femtosecond/picosecond CARS optical system. BS1—BS3, beam splitter; M1—M15, mirror; G1—G3, grating; CL1 and CL2, cylindrical lens; RM1 and RM3, concave rear mirror; RM2 and RM4, convex rear mirror; E1 and E2, edge; L1—L3, lens; OPA, optical parametric amplifier; EMCCD, electron multiplying charge coupled device.

蓝色圆点为柱面透镜 CL2 的焦点位置, 实验中 d 为 45 mm, 柱面透镜 CL1 和 CL2 的焦距均为 200 mm. 两路具有相等正负线性啁啾的光分别经过由 1 个凹面反射镜和 1 个凸面反射镜组成的缩束系统后, 以约 3° 的夹角入射 BBO 晶体中, 产生中心波长在约 401.8 nm, 谱宽约为 0.128 nm 的窄带和频信号, 作为 CARS 过程的探测光, 探测光的脉冲能量约为 120 μJ , 时域半高全宽约为 4 ps. 电动位移台 3 用于调节探测光相对于激发光的时间延迟.

三束光经过透镜 L1 后, 按照 2.1 节中的折叠式 BOXCARs 方式进行相位匹配, 激发焦点处的 N_2 分子, 从而产生波长约在 367 nm 附近的 CARS 信号, 在激发区域处泵浦光、斯托克斯光以及探测光的脉冲能量分别约为 90, 60 和 120 μJ . 利用光阑在空间上将信号光分离, 信号光经过透镜 L3 聚焦在光谱仪 (Andor, Shamrock) 的狭缝上, 从而被 EMCCD (Newton, Andor) 接收. 实验中光谱仪狭缝宽度设为 30 μm , 利用 CCD 的成像模式测量出聚焦点的空间尺寸约为 64 μm , 验证了 BOXCARs 相位匹配方式高空间分辨率的特点.

3.2 标准燃烧系统

本实验所用的燃烧器为目前燃烧实验普遍使用的 McKenna (Holthuis & Associates) 燃烧器, 其实物图与燃烧火焰图如图 4(a) 和图 4(b) 所示. 燃烧系统使用甲烷和空气作为燃料, 氮气作为保

护气, 示意图如图 4(c) 所示. McKenna 燃烧器作为标准燃烧器, 在不同流速下的火焰温度都有公认的测量数据作为参考, 本文使用德国宇航局的测量数据^[36]作为不同流速下的参考温度, 测量区域选择在燃烧器中心上方 15 mm 附近, 如图 4(b) 所示.

为模拟实际应用环境下的高温动态燃烧场, 实验中选择了 4 个不同温度的甲烷/空气流速配比, 通过在某一时间快速改变甲烷和空气流量计的流速, 实现火焰温度的快速改变. 4 个不同的流速配比及其对应的参考温度如表 1 所列.

表 1 4 种流速配比及其对应参考温度^[36]
Table 1. Four flow velocity ratios and their corresponding reference temperatures.

流速/(标准升·min ⁻¹)		参考温度/K
空气	甲烷	
15.00	1.10	1706
30.30	2.55	1967
15.00	1.42	1799
36.18	3.42	2110

4 结果与分析

实验中, 探测光时间延迟约取为 32 ps, 光谱仪采集速率为 1 kHz, 连续采集时间为 70 s, 共采集光谱 70000 幅. 在 70 s 的采集时间内, 按照表 1

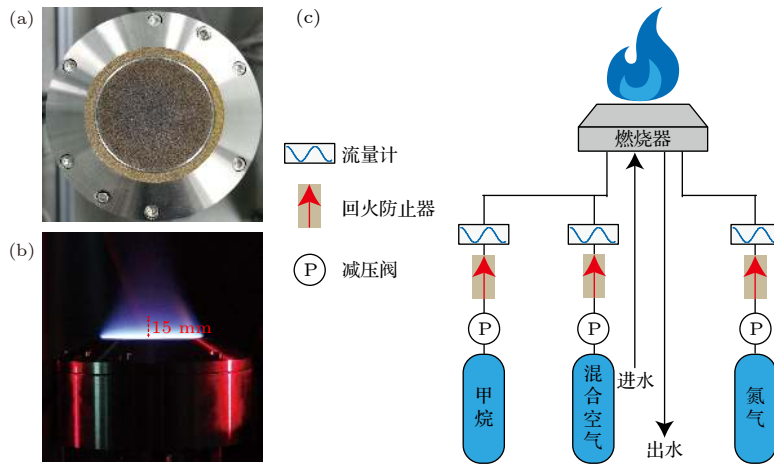


图 4 (a) 燃烧器实物图; (b) 平面火焰图; (c) 燃烧系统图

Fig. 4. (a) Image of burner; (b) image of flat flame; (c) diagram of combustion system.

的流量顺序共进行了 4 次流量切换, 模拟了 1700—2200 K 范围内的高温动态火焰. 为避免长时间采集下光谱坐标轴抖动带来误差, 对所采集到的光谱的峰进行了校准.

4.1 光谱拟合

通过将实际实验中的参数代入 2.2 节中的理论模型, 可获得符合实验条件的、不同温度下的理论光谱库, 理论光谱库的温度范围为 300—2500 K, 温度间隔为 1 K. 利用最小二乘法计算采集到的单幅光谱与理论光谱库中不同温度下的理论光谱的误差, 从而得到每个单幅光谱在不同温度下的拟合误差曲线, 理论拟合温度为单幅光谱拟合误差曲线最小值所对应的温度. 下面选择一幅光谱为例具体说明.

该幅光谱原始光谱如图 5(a) 所示, 原始光谱信噪比约为 2373.5, 高于此前报道的高温下的单幅信噪比^[33], 侧面说明了本系统实现单脉冲稳定测量的能力, 这里信噪比是指光谱峰的最大值除以背景噪声的标准差. 对原始光谱进行处理, 减去背景噪声, 将波长转换为对应的拉曼频移, 就可以得到如图 5(b) 所示的归一化光谱. 按照上文所述, 利用最小二乘法, 计算 2201 幅理论光谱与处理后的归一化光谱的拟合误差, 误差曲线如图 5(c) 所示, 误差最小值约为 0.05832, 对应温度为 1705 K, 则该幅光谱的拟合温度便为 1705 K. 实际光谱与误差最小温度下的理论光谱的对比如图 5(d) 所示, 可以看出, 实际光谱与理论光谱拉曼峰的位置与强度基本一一对应.

4.2 动态结果分析

按照 4.1 节的步骤, 对 70000 幅光谱进行了分析, 得到 70 s 内连续测量结果如图 6 所示.

图 6 中各段的红色线条为该段流速配比所对应的参考温度, 可以明显地看出, 在约 8.5, 28.6, 48.8 和 62.2 s 时间位置处, 由于改变甲烷和空气的流速配比, 火焰温度发生了变化. 图 6(a) 和图 6(b) 分别为 28.6—29 s 以及 65.2—65.6 s 时间段温度变化趋势的局部放大图, 可以看出, 改变流量后温度变化过程发生在 0.2 s 内. 千赫兹采集到的单幅光谱的拟合温度准确描述了火焰温度递增与递减的改变过程, 与温度本身过程量的特征相符合, 验证了本系统对于动态变化的高温火焰的响应能力.

图 6 中前 4 个流速配比下单幅光谱的测量温度的分布直方图如图 7 所示, 图 7 中红色直线表示该流速配比的参考温度, 左上角为该流速配比下的参考温度与平均温度的具体数值.

图 7 中 T_{tag} 为该流速配比下的参考温度, T_{mean} 为平均温度, 可以看出, 4 个流速配比下的单幅光谱的测量结果与平均温度均分布在参考温度附近, 说明高温下的测量结果较为准确稳定, 温度的抖动是由于高温下的热噪声以及火焰中折射率不均匀导致相位匹配的略微变化所产生的.

为进一步定量评价各段的测量精度, 计算了 4 个流速配比下温度测量的相对误差和相对标准偏差, 相对误差是利用该流速配比平均温度和参考温度的差的绝对值除以参考温度计算得到的, 而相对标准偏差是利用单幅光谱拟合温度的标准差除以平均温度计算得到的, 结果如表 2 所列.

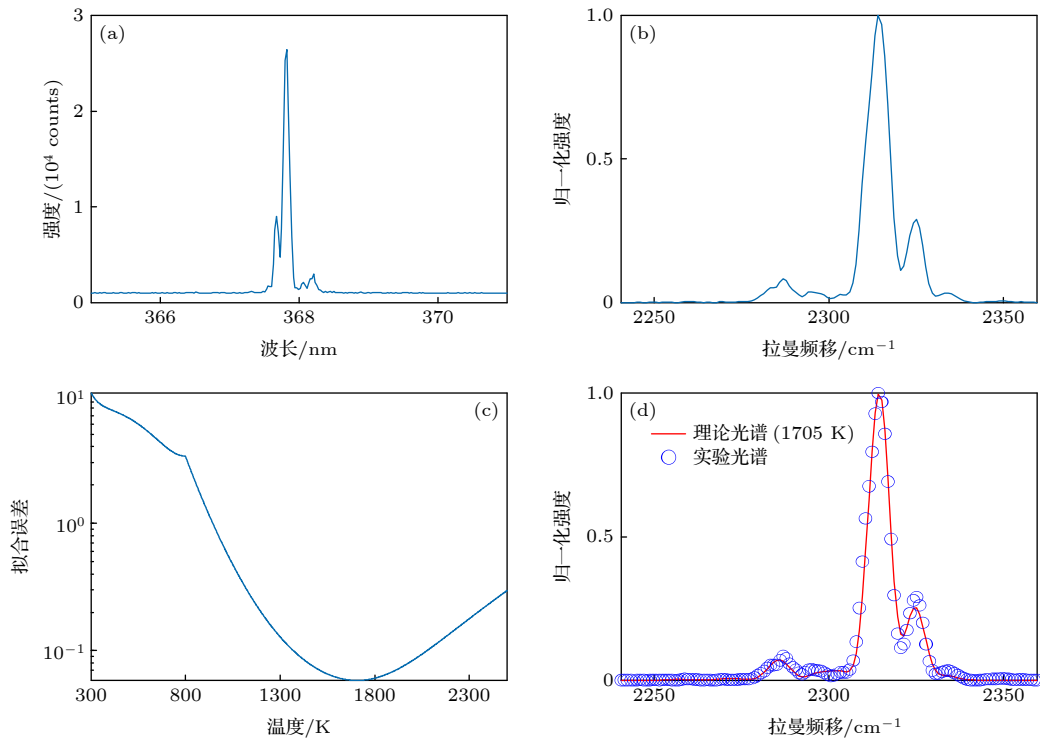


图 5 (a) 原始光谱; (b) 处理后的归一化光谱; (c) 拟合误差曲线; (d) 拟合光谱与实际光谱的对比

Fig. 5. (a) Original spectrum; (b) normalized spectrum after processing; (c) curve of fitting error; (d) comparison of fitting spectrum with actual spectrum.

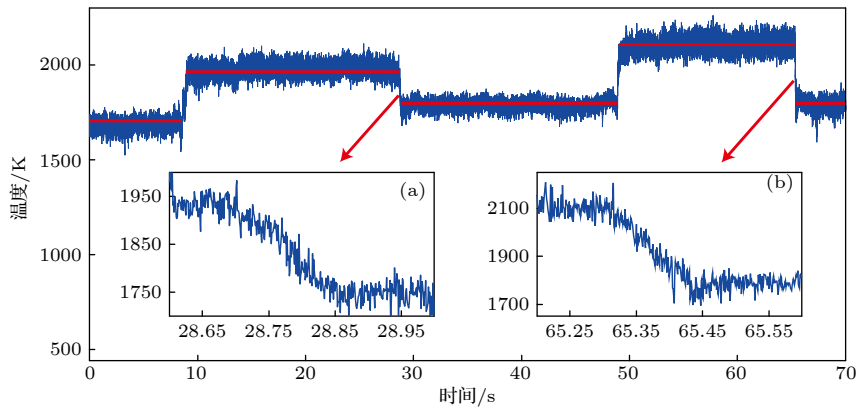


图 6 70 s 动态温度测量结果 (a) 28.6—29 s 局部放大图; (b) 65.2—65.6 s 局部放大图

Fig. 6. Results of dynamic temperature measurement within 70 s: (a) Local enlarged between 28.6 s and 29 s; (b) local enlarged between 65.2 s and 65.6 s.

表 2 4 个流速配比下测温的误差分析

Table 2. Error analysis of temperature measurement in four different flow velocity ratios.

时间段	参考温度/K	相对误差	相对标准偏差
0—8 s	1706	1.19%	1.75%
9—28.5 s	1967	0.53%	1.67%
28.9—48.8 s	1799	0.42%	1.42%
49—65.3 s	2110	0.21%	1.71%

4 个流速配比下测温结果的相对误差均小于 1.2%，相对标准偏差均小于 1.8%，说明单脉

冲温度测量结果较为真实可靠，验证了本系统在高温火焰中千赫兹、单脉冲温度测量的准确性与稳定性。

4.3 不同温度下光谱对比

为进一步说明混合飞秒/皮秒 CARS 测温的原理，从 4 个流速配比下各选择 1 个单幅光谱，对比其与最佳拟合的理论光谱，结果如图 8 所示，其中第 1 段所选择光谱与 4.1 节中选择光谱一致。

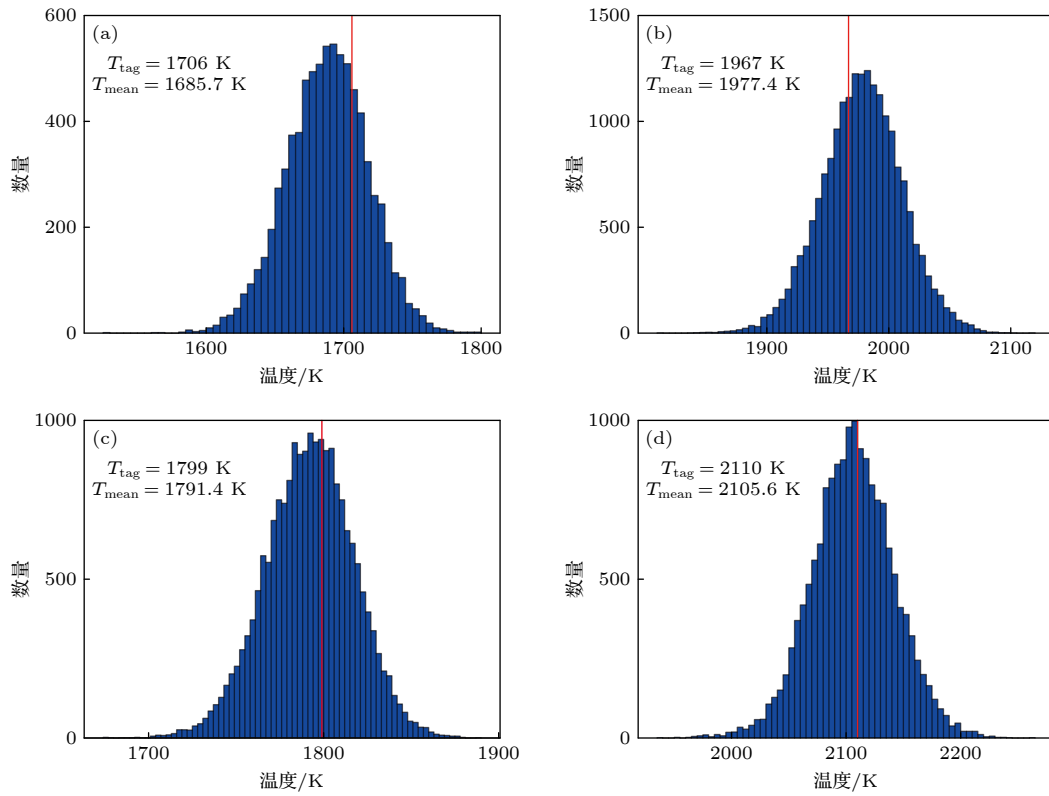


图 7 不同流速配比下测量温度的柱状分布图 (a) 0—8 s 段; (b) 9—28.5 s 段; (c) 28.9—48.8 s 段; (d) 49—65.3 s 段
 Fig. 7. Histograms of temperature measurements in different flow velocity ratios: (a) From 0 s to 8 s; (b) from 9 s to 28.5 s; (c) from 28.9 s to 48.8 s; (d) from 49 s to 65.3 s.

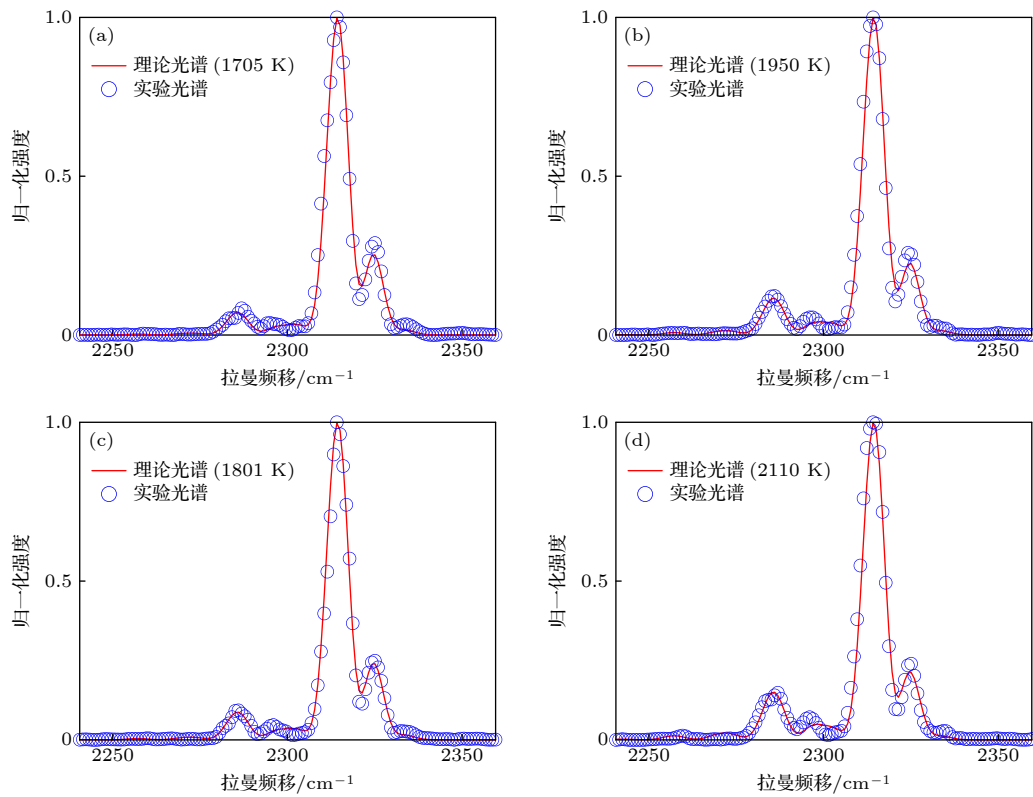


图 8 单幅光谱拟合结果 (a) 0—8 s 段; (b) 9—28.5 s 段; (c) 28.9—48.8 s 段; (d) 49—65.3 s 段
 Fig. 8. Fitting results of single shot: (a) From 0 s to 8 s; (b) from 9 s to 28.5 s; (c) from 28.9 s to 48.8 s; (d) from 49 s to 65.3 s.

从图 6 可以看到, 随着温度的变化, CARS 信号的拉曼峰的相对强度也发生了变化, 这是由于: 根据玻尔兹曼分布规律可以知道, 温度直接影响 N_2 分子的粒子数分布, 而不同能级上粒子数分布的多少会直接影响该能级所对应的拉曼峰的强度, 如图 8(d) 和图 8(a) 对比, 温度升高后, 低能级粒子数减少, 高能级粒子数增加, 所以可以看到右侧拉曼峰的强度降低, 而左侧拉曼峰的强度升高, 通过拉曼峰的相对变化, 就可以准确分辨出温度的变化. 同时不同温度对应的 N_2 分子的粒子数分布是各不相同的, 因此不同温度对应的 N_2 分子的拉曼光谱具有唯一性.

实验中为了验证各阶段测温数据的真实可靠, 选择利用标准燃烧器模拟动态高温火焰, 所以受限于标准燃烧器的温度参考数据, 4 个流速配比下的最小温度变化幅度为 93 K, 而最终测量结果能够准确追踪 0.2 s 内的温度变化过程, 同时各阶段的测温结果较为准确稳定, 因此该方法具有推广到实际应用中进行动态高温火焰温度测量的潜力.

5 结 论

本文利用基于二次谐波带宽压缩方法的混合飞秒/皮秒 CARS 测温系统在高温动态火焰中实现了温度的准确测量与动态响应. 实验中采用中心波长为 800 nm 的飞秒激光器作为系统光源, 通过将两束具有相等正负线性啁啾的飞秒光束非共路入射 BBO 晶体中, 获得了高能窄带的和频信号, 将和频信号作为 CARS 过程的探测光, 实现了高温火焰中千赫兹、单脉冲的温度测量. 利用标准燃烧器, 通过快速切换甲烷/空气的流速配比, 模拟了 1700—2200 K 温度范围内的高温动态火焰. 利用该测温方法在模拟的动态火焰中, 进行了连续 70 s 的温度测量. 将采集到的单幅光谱与理论光谱利用最小二乘法进行拟合, 得到了单幅光谱所对应的拟合温度. 70 s 时间内的连续测量结果显示, 该方法在高温下温度测量的相对误差小于 1.2 %, 相对标准偏差小于 1.8 %, 准确分辨了 0.2 s 内的温度变化过程, 验证了该系统在高温动态环境下测温的准确性与稳定性, 为复杂的动态高温燃烧场的温度测量提供了一种新的测量方案. 本文在甲烷/空气的标准燃烧器火焰中对该测温方法进行了验证, 未来可以将该方法推广到实际应用场景下对

未知温度的动态火焰的温度测量中, 如工业燃烧炉、炼油反应塔等, 从而为实际生产提供指导作用.

参考文献

- [1] Zhang B Q, Xu Z Y, Liu J G, et al. 2019 *Acta Phys. Sin.* **68** 233301 (in Chinese) [张步强, 许振宇, 刘建国, 等 2019 物理学报 **68** 233301]
- [2] Feng Y X, Huang Q X, Liang J H, Wang F, Yan J H, Chi Y 2012 *Acta Phys. Sin.* **61** 134702 (in Chinese) [冯玉霄, 黄群星, 梁军辉, 王飞, 严建华, 池涌 2012 物理学报 **61** 134702]
- [3] Li S Y, Zhang D Y, Gao Q, Li B, He Y, Wang Z H 2020 *Acta Phys. Sin.* **69** 234207 (in Chinese) [李帅瑶, 张大源, 高强, 李博, 何勇, 王智化 2020 物理学报 **69** 234207]
- [4] Moya F, Druet S A J, Taran J P E 1975 *Opt. Commun.* **13** 169
- [5] Roy S, Meyer T R, Lucht R P, Afzelius M, Bengtsson P E, Gord J R 2004 *Opt. Lett.* **29** 1843
- [6] Beyrau F, Bräuer A, Seeger T, Leipertz A 2004 *Opt. Lett.* **29** 247
- [7] Gord J R, Meyer T R, Roy S 2008 *Annu. Rev. Anal. Chem.* **1** 663
- [8] Roy S, Gord J R, Patnaik A K 2010 *Prog. Energy Combust. Sci.* **36** 280
- [9] Laubereau A, Kaiser W 1978 *Rev. Mod. Phys.* **50** 607
- [10] Kanga F M, Sceats M G 1980 *Opt. Lett.* **5** 126
- [11] Meyer T R, Roy S, Gord J R 2007 *Appl. Spectrosc.* **61** 1135
- [12] Seeger T, Kiefer J, Leipertz A, Patterson B, Kliewer C, Settersten T 2009 *Opt. Lett.* **34** 3755
- [13] Thomas S, Johannes K, Yi G, Patterson B D, Kliewer C J, Settersten T B 2010 *Opt. Lett.* **35** 2040
- [14] Beaud P, Frey H M, Lang T, Motzkus M 2001 *Chem. Phys. Lett.* **344** 407
- [15] Lucht R P, Roy S, Meyer T R, Gord J R 2006 *Appl. Phys. Lett.* **89** 251112
- [16] Wrzesinski P J, Stauffer H U, Kulatilaka W D, Gord J R, Roy S 2013 *J. Raman Spectrosc.* **44** 1344
- [17] Lang T, Motzkus M 2002 *J. Opt. Soc. Am. B* **19** 340
- [18] Roy S, Kulatilaka W D, Richardson D R, Lucht R P, Gord J R 2009 *Opt. Lett.* **34** 3857
- [19] Richardson D R, Stauffer H U, Roy S, Gord J R 2017 *Appl. Opt.* **56** E37
- [20] Courtney T L, Bohlin A, Patterson B D, Kliewer C J 2017 *J. Chem. Phys.* **146** 224202
- [21] Yang C B, He P, Escofet-Martin D, Peng J B, Fan R W, Yu X, Dunn-Rankin D 2018 *Appl. Opt.* **57** 197
- [22] Zhao H, Tian Z, Wu T, Li Y, Wei H 2020 *Appl. Phys. Lett.* **116** 111103
- [23] Richardson D R, Kearney S P, Guildenbecher D R 2020 *Appl. Opt.* **59** 8293
- [24] Miller J D, Slipchenko M N, Meyer T R, Stauffer H U, Gord J R 2010 *Opt. Lett.* **35** 2430
- [25] Zhao H, Tian Z, Li Y, Wei H 2021 *Opt. Lett.* **46** 1688
- [26] Zhao H, Tian Z, Wu T, Li Y, Wei H 2021 *Appl. Phys. Lett.* **118** 071107
- [27] Eckbreth A C 1978 *Appl. Phys. Lett.* **32** 421
- [28] Shirley J A, Hall R J, Eckbreth A C 1980 *Opt. Lett.* **5** 380
- [29] Chloe D 2017 *Ph. D. Dissertation* (Iowa: Iowa State University)
- [30] Vestin F, Nilsson K, Bengtsson P E 2008 *Appl. Opt.* **47** 1893
- [31] Bertagnolli K E, Lucht R 1996 *Symp. (Int.) Combust.* **26** 1825

- [32] Kovac J D 1998 *J. Chem. Edu.* **75** 545
- [33] Miller J D 2012 *Ph. D. Dissertation* (Iowa: Iowa State University)
- [34] Rahn L A, Palmer R E 1986 *J. Opt. Soc. Am. B* **3** 1164
- [35] Seeger T, Beyrau F, Bräuer A, Leipertz A 2003 *J. Raman Spectrosc.* **34** 932
- [36] Weigand P, Rainer L, Wolfgang M 2003 <http://www.dlr.de/vt/datenarchiv>

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

Tian Zi-Yang Zhao Hui-Jie Wei Hao-Yun Li Yan[†]

(State Key Laboratory of Precision Measurement Technology and Instrument, Department of Precision Instrument, Tsinghua University, Beijing 100084, China)

(Received 17 June 2021; revised manuscript received 2 July 2021)

Abstract

Temperature, as an important parameter in combustion diagnostic process, will directly affect the combustion efficiency and the generation of combustion products. The accurate measuring of combustion temperature and then controlling of combustion state can not only contribute to avoiding the generation of harmful waste gas, such as carbon monoxide (CO) and oxynitride (NO_x), but also improve the combustion efficiency, thereby saving the energy. However, in practical applications, dynamic and high-temperature combustion field has strict requirements for measurement accuracy and response speed of the thermometry technology. As an advanced spectral thermometry technology, coherent anti-Stokes Raman scattering (CARS) has a much higher spatial resolution, and can achieve accurate temperature measurement in high-temperature environment, so CARS has the potential applications in complex combustion field. For the temperature measurement requirements in the complex dynamic and high-temperature combustion field, we demonstrate a hybrid femtosecond/picosecond coherent anti-Stokes Raman scattering thermometry method through using the second harmonic bandwidth compression method, and achieve accurate measurements and dynamic response to temperature in dynamic and high-temperature combustion field. By using the narrow-band picosecond pulse obtained from the sum frequency process of femtosecond pulse in the BBO crystal as a probe pulse, this thermometry method can achieve single-shot, 1-kHz temperature measurement in high-temperature flame. We utilize the standard burner to simulate dynamic combustion field in a range of 1700–2200 K by changing the equivalence ratio quickly, and carry out continuous temperature measurement in 70 s by our thermometry method in this simulated dynamic and high-temperature flame. The least square method is used to fit the theoretical spectrum library to the actual single spectrum, and the fitting temperature corresponding to the actual single spectrum is obtained from the curve of fitting error. The continuous temperature measurements in 70 s exhibit superior performance in dynamic and high-temperature flame with a temperature inaccuracy less than 1.2% and a precision less than 1.8% at four different temperatures, and can track the temperature variation process within 0.2 s dynamically. These results verify the accuracy, stability and response speed in dynamic and high-temperature environment, and provide a new system scheme for thermometry in practical harsh combustion field.

Keywords: coherent anti-Stokes Raman scattering, thermometry, dynamic measurement

PACS: 42.65.Dr, 42.62.Fi, 47.80.Fg

DOI: 10.7498/aps.70.20211144

* Project supported by the National Key R&D Program of China (Grant Nos. 2020YFB2010701, 2020YFC2200101).

[†] Corresponding author. E-mail: liyan@mail.tsinghua.edu.cn