

ИЗМЕРЕНИЕ ТЕМПЕРАТУРЫ И КОНЦЕНТРАЦИИ ОН В СПИРТОВОЗДУШНОМ ПЛАМЕНИ МЕТОДОМ ЛАЗЕРНО-ИНДУЦИРОВАННОЙ ФЛУОРЕСЦЕНЦИИ

Б. Ф. Бояршинов, С. Ю. Федоров

Институт теплофизики им. С. С. Кутателадзе, 630090 Новосибирск, boyar@itp.nsc.ru, fedorov@itp.nsc.ru

С использованием лазерно-индуцированной флуоресценции и зондовых методов измерены температуры и концентрации ОН в пламени этанола. Показано, что максимальные значения температуры, полученные разными методами, соответствуют друг другу. При горении этанола, испаряющегося с поверхности сферы диаметром 15 мм, с учетом процессов тушения флуоресценции оценена концентрация радикала: $\approx 7 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-3}$. При измерении концентрации калибровка аппаратуры проводилась в опытах с пламенем водорода, для которого эти данные известны. Установлено, что в обоих случаях максимум концентрации ОН смещен относительно максимума температуры. Полученные данные могут быть полезны при изучении горения капель жидкого топлива.

Ключевые слова: лазер, флуоресценция, пламя.

ВВЕДЕНИЕ

Массовая доля радикалов ОН в пламенах мала ($\approx 0,1 \%$), поэтому они не влияют на термодинамические параметры газа в области химического реагирования. Однако распределение ОН в пламенах важно при изучении кинетики и механизмов взаимодействия турбулентности и горения. При этом имеет значение взаимное расположение максимумов температуры и концентрации радикала, а также их абсолютные величины. При диффузионном горении метана в воздухе, например, при спутном движении потоков горючего и окислителя, по данным [1] положения максимумов температуры и концентрации ОН совпадают, при встречном — максимум ОН может быть смещен в область окислителя.

Для измерения средних и мгновенных значений концентрации ОН с высоким пространственным разрешением применяется метод лазерно-индуцированной флуоресценции (ЛИФ). Он основан на переводе радикалов под действием лазерного излучения из нижнего в возбужденное электронное состояние и измерении интенсивности флуоресценции при обратном переходе их в нижнее состояние. В опытах с горением гомогенных смесей и в диффузионных пламенах при ламинарном и турбулент-

ном течении продуктов реакции метод реализован в режиме насыщения сигнала [2, 3]. С его помощью для горения водорода в воздухе, а также горения смеси $\text{CO-H}_2\text{-N}_2$ [4] получены концентрации ОН, значительно (от четырех до шести раз) превышающие равновесные значения.

Насыщение сигнала достигается при высокой плотности мощности лазерного излучения, когда становится заметной роль вынужденных переходов между энергетическими уровнями. По интенсивности определенной вращательной линии в спектре флуоресценции можно легко рассчитать концентрацию радикалов. При этом регистрирующая аппаратура должна исключать не дающие насыщения краевые пространственные и временные области импульса возбуждающего излучения.

В линейном режиме — без насыщения — флуоресценция регистрируется при возбуждении лазерным излучением меньшей мощности. Временная характеристика сигнала определяется скоростью спонтанных переходов, сравнимой со скоростью тушения возбужденных состояний. Поэтому интенсивность флуоресценции оказывается частично ослабленной. Этот фактор можно не учитывать при измерении температуры. Однако при измерении концентрации в таком режиме требуется расчет квантового выхода флуоресценции через скорости тушения возбужденных состояний основными компонентами пламени с использованием дан-

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (номера проектов 00-15-99090 и 02-02-16170).

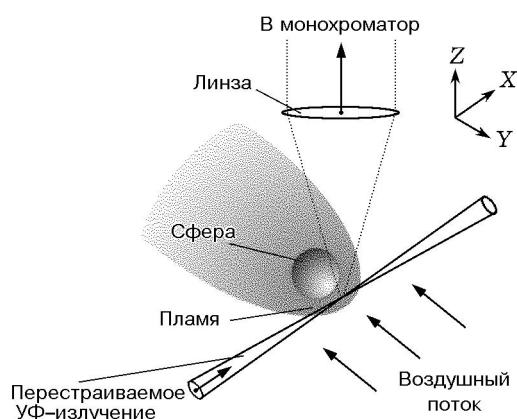


Рис. 1. Схема эксперимента с диффузионным горением этанола вблизи сферы

ных о составе газов и температуре в месте измерений.

Цель работы — измерение температуры спиртовоздушного пламени, а также концентрации радикала ОН методом ЛИФ в линейном режиме. Калибровка и учет тушения флуоресценции основаны на известных данных об абсолютной концентрации ОН при горении водорода [2] и данных о составе газов в спиртовоздушных пламенах [5].

АППАРАТУРА

Эксперименты проводились по обычной схеме рассеяния (рис. 1). Импульсно-периодический твердотельный Nd:YAG-лазер с модуляцией добротности и преобразованием излучения во вторую гармонику использовался для накачки перестраиваемого лазера на красителе родамин 6Ж с последующим удвоением частоты ($E = 0,05$ мДж/имп, $\Delta t = 15$ нс, $\lambda = 2730 \div 2900$ Å, $f = 10$ Гц). Узкополосное ($\Delta\lambda = 0,4$ Å) ультрафиолетовое излучение перестраиваемого лазера фокусировалось линзой ($F = 140$ мм) в объект измерений. Сканирование его длины волны проходило со скоростью ≈ 10 Å/мин. Излучение ЛИФ из области перетяжки лазерного пучка с размерами $0,1 \times 0,1 \times 1,0$ мм собиралось в вертикальном направлении и фокусировалось линзами с угловой апертурой соответственно 1 : 3 и 1 : 10 на входную щель призматического монохроматора ДМР-4, используемого как широкополосный фильтр. Прошедшее излучение за выходной щелью монохроматора регистрировалось фотумножителем. Сигнал фотум-

ножителя ФЭУ-97 попадал на вход зарядово-цифрового преобразователя и интегрировался в течение 200 нс. Данные накапливались и обрабатывались на компьютере.

В опытах с горением спирта использовалась сфера диаметром 15 мм из пористой нержавеющей стали, которая пропитывалась этанолом, и ее поверхность поддерживалась влажной в течение эксперимента. С помощью координатного устройства объект мог перемещаться в горизонтальной плоскости с точностью 0,01 мм. Образец обдувался потоком воздуха со скоростью $(0,7 \pm 0,12)$ м/с, при которой устанавливался ламинарный режим течения с неподвижным фронтом пламени. Скорость выгорания $0,027$ кг/(м²·с). Исследовалась окрестность лобовой точки на расстоянии от поверхности $y < 4$ мм. В опытах с горением водорода воспроизводились условия экспериментов [2, 3]: в спутный воздушный поток, распространяющийся со скоростью 9,2 м/с, вместо сферы горизонтально устанавливалась горелка с диаметром сопла $d = 3$ мм. Рассматривалось сечение на расстоянии от сопла $x/d = 10$; число Рейнольдса $Re = Ud/\nu = 660$ соответствовало ламинарному течению (U — скорость газа на срезе горелки, ν — кинематическая вязкость). Измерения проводились в пламени при вертикальном и горизонтальном перемещениях горелки.

ИЗМЕРЕНИЕ ТЕМПЕРАТУРЫ

Определение температуры основано на сравнении формы спектра, полученного экспериментально в точке измерения, с формой спектров, рассчитанных для различных температур. Поэтому необходимой составной частью работы являлся расчет спектров ЛИФ и их анализ с целью выбора наиболее благоприятных условий измерения температуры и концентрации радикалов ОН.

На рис. 2 показан спектр спонтанной эмиссии ОН, полученный сверткой экспериментальных данных из [6] с треугольной аппаратной функцией 2,2 Å. На нем отмечены интервалы длин волн, которые использовались в настоящей работе. Для возбуждения выбрана колебательно-вращательная полоса $1 \leftarrow 0$ электронного перехода $A^2\Sigma^+ - X^2\Pi$ радикала ОН. Перестройка длины волны лазерного излучения осуществлялась в диапазоне $2810 \div 2870$ Å. Флуоресценция из измерительного объема при-

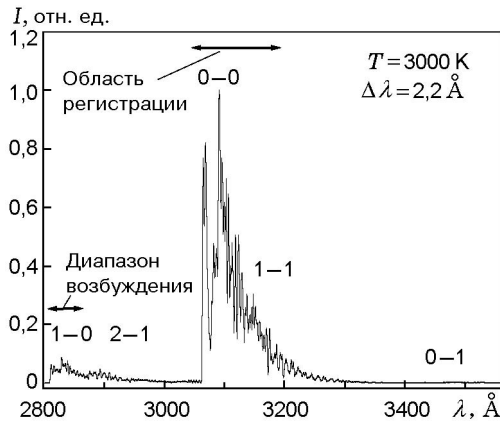


Рис. 2. Схема возбуждения флуоресценции: полоса $1 \leftarrow 0$ сканировалась узкополосным ($\Delta\lambda = 0,4 \text{ Å}$) лазерным излучением; сигнал ЛИФ регистрировался во всей области пропускания широкополосного фильтра ДМР-4 ($3040 \div 3180 \text{ Å}$)

нималась в области $3040 \div 3180 \text{ Å}$, включающей полосы $0 \rightarrow 0$ и $1 \rightarrow 1$.

Частота отдельного электронно-колебательно-вращательного перехода $n'v'J' \leftarrow n''v''J''$ рассчитывалась по формуле

$$\nu_{n''v''J''}^{n'v'J'} = \frac{1}{hc} \Delta E = (T_{n'} + G_{v'} + F_{J'}) - (T_{n''} + G_{v''} + F_{J''}),$$

где n, v, J — соответствующие квантовые числа, h — постоянная Планка, c — скорость света, ΔE — разность энергий двух состояний, T_n, G_v, F_J — электронный, колебательный и вращательный термы состояний. Использовались таблицы термов из [6]. Число радикалов в начальном состоянии определялись по формуле

$$N_{n''v''J''} = \frac{N}{Q} (2J'' + 1) \times \exp \left[- (T_{n''} + G_{v''} + F_{J''}) \frac{hc}{kT_R} \right],$$

где N — концентрация, Q — статистическая сумма по всем состояниям, k — постоянная Больцмана, T_R — вращательная температура.

Интенсивность сигнала ЛИФ без насыщения для рассматриваемого перехода записывалась с использованием работы [7] в виде

$$I_{n''v''J''}^{n'v'J'} = C N_{n''v''J''} h \nu_{n''v''J''}^{n'v'J'} \rho \Delta x B_{n''v''J''}^{n'v'J'} Y,$$

где C — константа, включающая оптическую и электронную эффективность схемы и угол

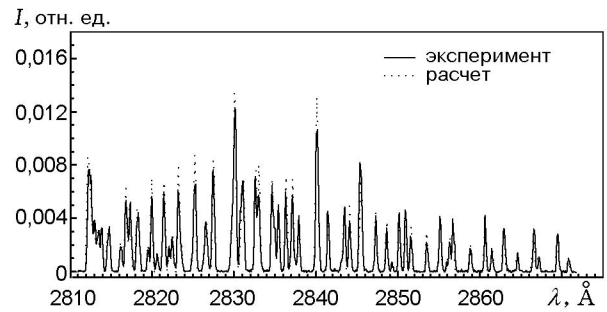


Рис. 3. Формы спектров ЛИФ радикала ОН, полученных расчетом для $T_R = 1749 \text{ K}$ ($T = 1854 \text{ K}$) и в эксперименте при горении испаряющегося этанола в лобовой точке сферы при $y = 2,0 \text{ мм}$

сбора флуоресценции, ρ — плотность мощности лазерного излучения в фокусе пучка, Δx — длина измерительного объема, Y — квантовый выход флуоресценции, определяемый как отношение числа излучающих радикалов к общему числу возбужденных радикалов. Для линий одной колебательно-вращательной полосы (без учета колебательной и электронной вероятности) коэффициенты Эйнштейна рассчитывались через факторы Хенля — Лондона [8] $S_{J''}^{J'}$ с нормировкой на величину вырождения вращательного уровня:

$$B_{n''v''J''}^{n'v'J'} \propto \frac{8\pi}{3h^2} \frac{S_{J''}^{J'}}{2J'' + 1}.$$

Частоты и интенсивности всех линий, разрешенных правилами отбора, при заданном значении T_R определялись для 12 ветвей. Затем рассчитывался спектр путем свертки с формой лазерной линии. Варьированием значения вращательной температуры как параметра достигалось наилучшее совпадение по методу наименьших квадратов форм экспериментального и расчетного спектров. Полученное значение температуры корректировалось по формуле

$$T = T_R (1 - \gamma T_R)^{-1},$$

где $\gamma = 3,24 \cdot 10^{-5}$ для ОН [9].

На рис. 3 приведены рассчитанные и измеренные спектры. В наших опытах измерения проводились с накоплением сигнала по 5 импульсам. Предварительная обработка включала нормировку на мощность лазерного излучения, измеряемую с помощью фотодиода, а так-