

# Спектроскопия высокого разрешения контура линии за одну лазерную вспышку на основе DBB – CARS-интерферометрии

К.А.Верещагин, А.К.Верещагин, В.Клаусс, Д.Н.Клименко, М.Ошвальд, В.В.Смирнов, О.М.Стедьмах, В.И.Фабелинский

*Сообщается о разработке спектроскопической методики высокого разрешения, позволяющей получать спектры комбинационно-активных молекулярных переходов нестационарных объектов за время одного лазерного импульса с разрешением  $\sim 0.1 \text{ см}^{-1}$ . Методика основана на использовании КАРС-спектроскопии с применением интерферометра Фабри–Перо для спектрального анализа КАРС-сигнала и детектирования кольцевой интерференционной картины на двумерном многоканальном фотоприемнике. Показано, что использование Dual-Broad-Band – CARS-конфигурации для реализации КАРС-процесса обеспечивает эффективное усреднение спектрально-амплитудных шумов генерируемого в отдельной лазерной вспышке КАРС-сигнала и, в сочетании с угловым интегрированием двумерной интерференционной картины, приводит к значительному улучшению качества интерферограмм. Методика апробирована при диагностике нестационарного кислородно-водородного пламени, где одновременно получалась и использовалась необходимая для определения температуры информация о параметрах контуров спектральных линий Q-ветви молекул водорода.*

**Ключевые слова:** КАРС, коэффициенты столкновительного уширения, Фабри–Перо интерферометрия, термометрия горения, водородно-кислородное горение.

## 1. Введение

Использование КАРС-спектроскопии для термометрии кислородно-водородного горения при высоких давлениях и температурах, основанное на регистрации спектров Q-ветви водорода [1–4], показало, что для корректного определения температуры газа необходимо знание коэффициентов столкновительного уширения линий Q-ветви молекулами  $\text{H}_2\text{O}$  наряду с их температурной и J-зависимостью (зависимость ширины линии или коэффициента ударного уширения линии от вращательного квантового числа J).

Ранее коэффициенты ударного уширения линий Q-ветви водорода молекулами  $\text{N}_2$ ,  $\text{H}_2$  и  $\text{H}_2\text{O}$  при температурах, не превышающих 1800 К, были измерены Берже с соавторами [5–7]. Методом спектроскопии вынужденного комбинационного усиления света высокого разрешения с непрерывными одночастотными сканируемыми источниками накачки исследовалась газовая смесь внутри нагреваемой кюветы высокого давления, наполненной водородом и парами воды. Как отмечалось в [5, 6], главным фактором, ограничивающим повышение температуры газовой смеси в кювете, являлась большая химическая активность водяного пара при высоких температурах в стационарных условиях.

В работе [4] нами была предложена методика измерения ширины линий Q-ветви водорода с использованием КАРС-спектроскопии непосредственно в кислородно-водородной камере сгорания, работающей в режиме импульсно-периодического обновления смеси, при высокой температуре ( $T \sim 2000 - 3000 \text{ К}$ ) и давлении  $\sim 100 \text{ бар}$ . В этой работе при высоких температурах были измерены коэффициенты столкновительного уширения различных линий Q-ветви водорода, уширенных столкновениями с молекулами воды. Следует отметить, что полученные при 2700 К коэффициенты столкновительного уширения линий  $Q_1$ ,  $Q_3$ ,  $Q_5$  и  $Q_7$  водорода в пределах экспериментальной ошибки совпадают со значениями, экстраполированными из величин, измеренных при 1800 К [5–7].

Если для КАРС-термометрии кислородно-водородных пламен в температурном диапазоне 300–2700 К экспериментальные и экстраполированные данные об уширении линий водорода могут быть успешно использованы совместно с модельными вычислениями [4–7], то для кислородно-углеводородных пламен проблема корректного определения температуры остается не решенной. Это связано, в основном, с недостаточной информацией о величинах коэффициентов уширения линий водорода при столкновениях с  $\text{N}_2$ ,  $\text{CO}_2$  и т. д. при повышенных температурах. Дополнительные экспериментальные сложности возникают также из-за необходимости одновременного измерения концентраций  $\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{CO}_2$  и  $\text{N}_2$  в продуктах сгорания за время одиночного лазерного импульса. При этом точность определения температуры по КАРС-спектрам критична к надежности имеющихся данных по коэффициентам уширения линий, к их зависимости от температуры, а также к точности измерения концентраций партнеров по столкновениям. Таким образом, разработка методических аспектов высокотемператур-

К.А.Верещагин, А.К.Верещагин, В.В.Смирнов, О.М.Стедьмах, В.И.Фабелинский. Институт общей физики им. А.М.Прохорова РАН, Россия, 119991 Москва, ул. Вавилова, 38; e-mail: veresch@kapella.gpi.ru; vvs@kapella.gpi.ru; stelmakh@kapella.gpi.ru

W.Clauss, M.Oschwald, D.N.Klimenko. German Aerospace Research Center, DLR, Langer Grund, D-74239, Hardthausen, Germany

Поступила в редакцию 3 апреля 2006 г.

ной термометрии и связанная с этой проблемой КАРС-спектроскопия контура линии высокого разрешения за один лазерный импульс остаются все еще актуальными.

## 2. Эксперимент

В наших предыдущих экспериментах [4] мы разработали спектроскопическую методику высокого разрешения, которая позволила получать КАРС-спектры молекулярных переходов Q-ветви водорода в нестационарной среде за один лазерный импульс с разрешением  $\sim 0.1 \text{ см}^{-1}$ . Методика основана на применении интерферометра Фабри – Перо для спектрального анализа профиля линии комбинационного перехода с регистрацией интерференционной картины при помощи линейного CCD-детектора. Анализируемый КАРС-спектр выбранного перехода Q-ветви регистрируется в течение одного лазерного импульса посредством широкополосного КАРС (Broad-Band (BB) CARS-конфигурация). При помощи этой методики были измерены коэффициенты столкновительного уширения ряда линий Q-ветви, однако ошибка измерения этих коэффициентов составляла около 30%.

Цель настоящей работы заключалась в уменьшении ошибок измерений ширин линий за счет применения схем КАРС-спектроскопии, позволяющих более эффективно усреднять источники шумов КАРС-сигнала, получаемого за один лазерный импульс (10 нс).

Исследования, проведенные в рамках данной работы, показали, что главным фактором ухудшения качества интерферограмм является спектральный шум лазера на красителе. Более того, было выяснено, что независимо от схемы используемых лазеров на красителе (резонаторный, снабженный различными селектирующими элементами, или безрезонаторный, работающий в режиме усиления спонтанных шумов) спектральный профиль КАРС-сигнала почти всегда имел ярко выраженную шумовую структуру в пределах спектральной ширины одного выбранного колебательно-вращательного перехода (см. рис.2).

Чтобы решить эту проблему и повысить качество спектра контура линии, получаемого за один лазерный импульс, мы применили схему КАРС с двумя широкополосными лазерами накачки – DBB – CARS-конфигура-

цию (Dual-Broad-Band CARS [8, 9]). Такой подход уменьшает спектральные шумы сигнала КАРС (в нашем случае он генерируется в пределах контура отдельной линии), получаемого за время одного лазерного импульса. Это происходит благодаря усреднению спектра вынуждающей силы (определяется сверткой спектров двух широкополосных лазеров накачки) при взаимодействии излучения этих лазеров с молекулами исследуемого газа в условиях комбинационно-активного резонанса.

Помимо вышесказанного, к дополнительному зашумлению профилей интенсивностей интерферограмм приводит наличие пространственной спекл-структуры, присутствующей в плоскости CCD-детектора из-за использования многомодового оптического волокна для транспортировки КАРС-сигнала. Для уменьшения этой части вклада в искажение профилей линий при обработке данных мы проводили угловое интегрирование по окружности кольцевой картины регистрируемых на двумерную CCD-матрицу интерферограмм Фабри – Перо.

Оптическая схема экспериментальной установки приведена на рис.1. Для реализации DBB – CARS-подхода накачка процесса КАРС осуществлялась излучением двух лазеров на красителях (желтый и красный) с относительно широкими спектральными профилями ( $\sim 5 \text{ см}^{-1}$ ). С одной стороны, такие ширины спектральных профилей малы настолько, что свертка их имеет ширину, меньшую, чем расстояние между линиями Q-ветви ( $20 - 100 \text{ см}^{-1}$ ), а с другой – такие ширины являются достаточными для эффективного усреднения по спектрам излучения лазеров на красителе. Разность центральных частот спектров излучения этих лазеров настраивалась на частоту зондируемого перехода. В качестве третьей волны для накачки КАРС использовалась вторая гармоника излучения одночастотного (ширина  $\sim 100 \text{ МГц}$ ) импульсного  $\text{Nd}^{3+} : \text{YAG}$ -лазера Infinity (Coherent Radiation). Типичная выходная энергия этого лазера на длине волны 532 нм при длительности импульса 3 нс составляет 100 – 200 мДж за импульс.

Часть энергии ( $\sim 10 - 15 \text{ мДж}$ ) использовалась для накачки КАРС, а остальная – для накачки обоих лазеров на красителе. В одном из лазеров на красителе (красном) применялся раствор красителя Pyridine в растворителе DMSO и выходная энергия составляла 3 мДж за импульс,

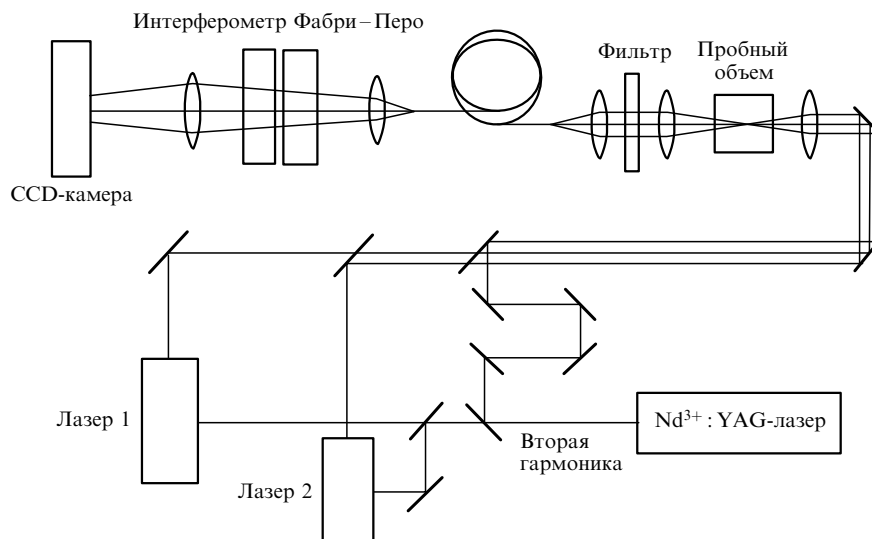


Рис.1. Оптическая схема экспериментальной установки.

во втором (желтом) – раствор красителя Rhodamine 6G в метаноле, выходная энергия составляла 2 мДж за импульс. Частоту излучения красного лазера можно было перестраивать так, что разность центральных частот двух лазеров на красителе ( $\sim 4000 \text{ см}^{-1}$ ) могла быть настроена на комбинационные частоты индивидуальных линий  $Q_1 - Q_9$  молекулы водорода. Все три лазерных пучка фокусировались либо внутрь импульсной камеры сгорания высокого давления, либо внутрь кюветы, содержащей газ в стационарных условиях. КАРС-спектр генерировался за один лазерный импульс с частотой повторения 1 Гц.

Интерферометр Фабри – Перо (см. рис.1), используемый для анализа КАРС-спектров, обладал областью свободной дисперсии  $1.67 \text{ см}^{-1}$  и резкостью 12–18. Специально разработанное программное обеспечение позволяло считывать записанные интерферограммы, затем вычислять центр их симметрии, производить угловое интегрирование и определять параметры контура спектральной линии.

### 3. Результаты и их обсуждение

В наших ранних экспериментах [4], основанных на ВВ – CARS-конфигурации, волнами накачки служили вторая гармоника одночастотного  $\text{Nd}^{3+} : \text{YAG}$ -лазера (волна накачки) и излучение лазера на красителе с шириной спектра  $\sim 5 \text{ см}^{-1}$  (стоксова волна). Выяснилось, что независимо от конструкции лазера на красителе (мы использовали как лазеры с резонатором и различной модовой структурой, так и безрезонаторный лазер) спектральные шумы лазерного излучения были существенными и невоспроизводимыми от импульса к импульсу. Эти нерегулярные шумы были широкополосными и имели фурье-компоненты того же частотного масштаба, что и ширины комбинационных линий.

Такая шумовая модуляция приводила к появлению случайных спектральных структур на контуре отдельной линии КАРС-спектра Q-ветви, что можно наблюдать в серии КАРС-интерферограмм, представленных на рис.2. Более того, многие интерферограммы были настолько зашумлены, что их невозможно было использовать для извлечения информации о параметрах контура спектральной линии. Такие интерферограммы исключались из рассмотрения, а это, в свою очередь, приводило к увеличению статистических ошибок в вычислении ширины линий.

В результате использования DBB – CARS-подхода и двумерного детектирования кольцевой структуры интерферограмм Фабри – Перо с последующим их угловым интегрированием почти все интерферограммы, полученные в наших экспериментах в отдельном лазерном импульсе, стали пригодными для измерений ширины линий (рис.3).

Для сравнения ВВ – CARS- и DBB – CARS-конфигураций ширины линии  $Q_1$  были измерены при одинаковых условиях в кювете со смесью водорода и азота при давлении 1 и 40 бар соответственно (рис.4). В обоих случаях аппаратная функция составляла  $0.09 \text{ см}^{-1}$ . Показаны гистограммы ширины линии  $Q_1$  водорода для этих конфигураций. Средняя ширина линии перехода в обоих случаях составила  $0.16 \text{ см}^{-1}$ , ширина гистограммы для DBB – CARS-конфигурации была равна  $0.006 \text{ см}^{-1}$ , тогда как для ВВ – CARS-конфигурации –  $0.017 \text{ см}^{-1}$ . Можно сделать вывод, что применение DBB – CARS-конфигурации

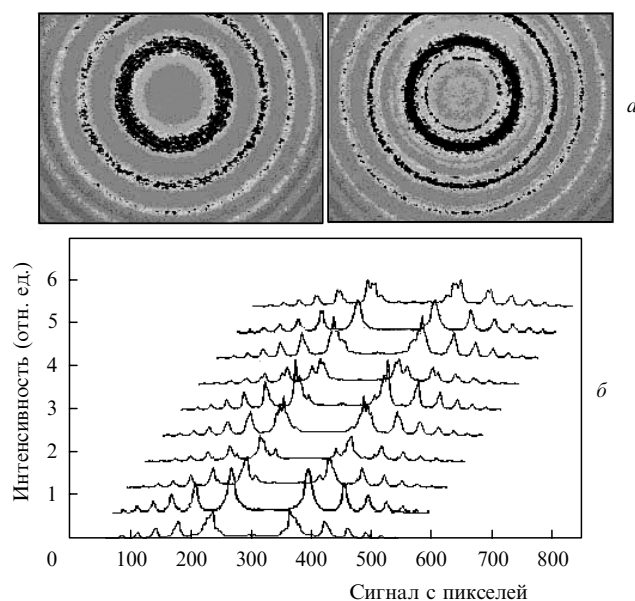


Рис.2. Кольцевая структура интерферограмм Фабри – Перо для двух последовательных лазерных импульсов (ВВ – CARS-конфигурация), полученных в кювете со смесью  $\text{H}_2 - \text{N}_2$  (давление 3 и 42 бар соответственно) при комнатной температуре (наблюдается хаотическая спекл-модуляция кольцевой картины по всему световому полю, а также флуктуирующая подструктура интерференционных колец, обусловленная спектральными флуктуациями стоксового лазера от импульса к импульсу) (а) и результаты углового интегрирования интерферограмм для серии из 10 лазерных импульсов, полученные в ВВ – CARS-конфигурации в кювете со смесью  $\text{H}_2 - \text{N}_2$  (3 и 42 бар) при комнатной температуре; явно видны хаотические модуляции интенсивности спектральных линий вследствие флуктуаций спектра стоксового лазера от импульса к импульсу; для дальнейшей обработки спектров требуется селекция (б).

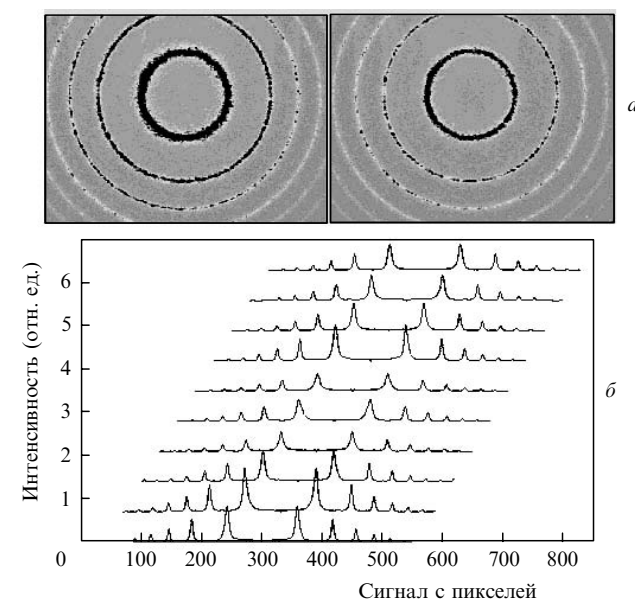


Рис.3. Кольцевая структура интерферограмм Фабри – Перо для двух последовательных лазерных импульсов (DBB-CARS-конфигурация), полученных в кювете со смесью  $\text{H}_2 - \text{N}_2$  (давление 3 и 14 бар соответственно) при комнатной температуре (наблюдается только хаотическая спекл-модуляция кольцевой картины по всему световому полю) (а) и результаты углового интегрирования интерферограмм для серии из 10 лазерных импульсов, полученные в DBB – CARS-конфигурации из кюветы со смесью  $\text{H}_2 - \text{N}_2$  (3 и 14 бар) при комнатной температуре; все спектральные линии имеют хорошее качество и пригодны для дальнейшей обработки (б).

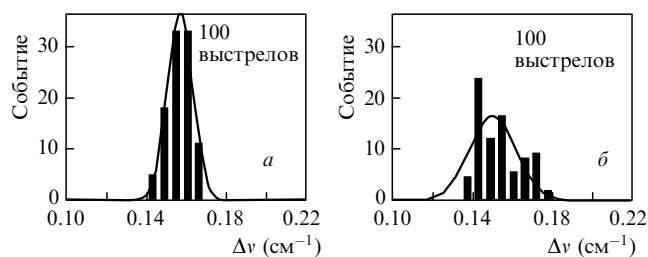


Рис.4. Гистограммы измеренных значений ширин линий  $Q_1$  водорода для DBB–CARS-конфигурации (а) и BB–CARS-конфигурации (б) при одинаковых экспериментальных условиях:  $H_2-N_2$  (давление 1 и 40 бар соответственно) при комнатной температуре. Средняя ширина линии  $0.16\text{ см}^{-1}$ , ширина гистограммы для DBB–CARS-конфигурации  $0.006\text{ см}^{-1}$ , для BB–CARS-конфигурации –  $0.017\text{ см}^{-1}$ .

позволяет получать лучшую точность при измерениях ширин линий за один лазерный импульс.

Опираясь на вышеизложенные результаты, можно предложить новый подход к измерению температуры пламен с углеводородным топливом за один лазерный импульс, когда пробной молекулой является водород. Идея состоит в одновременной регистрации спектра Q-ветви водорода при помощи решеточного спектрографа (измерение интенсивностей линий) и интерферометра (измерение ширин линий), использующихся последовательно в одном оптическом тракте и имеющих ортогональные дисперсии. Похожая схема была успешно применена для измерений плотности смеси  $D_2$  с Ag, содержащейся в стационарной кювете [10]. При таком подходе информация о ширинах линий, полученная за один лазерный импульс из DBB–CARS-спектра, используется напрямую для получения сведений об относительных населенностях колебательно-вращательных состояний и, соответственно, температуры и не требует знания концентраций компонентов смеси, столкновения с которыми приводят к уширению линий зондируемой молекулы.

#### 4. Выводы

Применение DBB–CARS-конфигурации (усреднение по спектрам излучения лазеров накачки) совместно с угловым интегрированием двумерных интерферограмм ведет к существенному улучшению качества интерферограмм, получаемых при измерении ширин линий Q-ветви водорода за один лазерный импульс. Почти все DBB–CARS-интерферограммы, регистрируемые в импульсно-периодической камере сгорания высокого давления за один лазерный импульс, стали пригодными для измерения ширин линий. Эти результаты позволяют также сделать вывод о том, что данный подход пригоден не только для схем кислородно-водородной КАРС-термометрии, но также для исследования пламен, в которых углеводородные соединения используются в качестве топлива, а окислителем служит кислород воздуха.

1. Bergmann V., Stricker W. *Appl. Phys. B*, **61**, 49 (1995).
2. Hussong J., Lueckerath R., Stricker W., Bruet X., Joubert P., Bonamy J., Robert D. *Appl. Phys. B*, **73**, 165 (2001).
3. Grisch F., Bouchardy P., Vingert L., Clauss W., Oschwald M., Smirnov V.V., Stel'makh O.M. *Progress in Astronautics and Aeronautics*. Ed. by Vigor Yong (Reston: AIAA Publ., 2003, Ch. 10).
4. Clauss W., Klimenko D.N., Oschwald M., Vereschagin K.A., Smirnov V.V., Stelmakh O.M., Fabelinsky V.I. *J. Raman Spectrosc.*, **33**, 906 (2002).
5. Berger J.-P. *Thèse de Doctorat* (Universite de Bourgogne, Dijon, France, 1994).
6. Michaut X., Berger J.-P., Saint-Loup R., Chaussard F., Berger H., in *'Combustion Dans Les Moteurs Fuseses'* (Toulouse, France: Cepadues Editions, 2001, p. 321).
7. Shaussard F., Michaut X., Saint-Loup R., Berger H., Joubert P., Lance B., Bonamy J., Robert D. *J. Chem. Phys.*, **112**, 158 (2000).
8. Alden M., Bengtsson P.-E., Edner H. *Appl. Opt.*, **25**, 4493 (1986).
9. Eckbreth A.C., Anderson T.J. *Opt. Lett.*, **11**, 496 (1986).
10. Gillespie W.D., Hahn J.W., Bowers W.J., Hurst Jr. W.S., Rosasco G.J. *Appl. Opt.*, **38** (3), 534 (1999).