

Исследование ширин линий Q-ветви молекул водорода при высоких температурах в импульсной H_2-O_2 -камере сгорания высокого давления методами КАРС-спектроскопии

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

Приведены результаты измерения ширин отдельных линий Q-ветви молекул водорода и соответствующих коэффициентов уширения, обусловленных столкновениями с молекулами воды при $T = 2700$ К в импульсно-периодической водородно-кислородной камере сгорания высокого давления (50–200 атм). За время одного лазерного импульса одновременно регистрировались спектры КАРС-контуров отдельных линий $Q_1 - Q_7$ водорода, импульсы давления и широкополосные спектры КАРС всей Q-ветви H_2 . Анализ формы контуров линий выполнялся с помощью интерферометра Фабри–Перо. Температура в зондируемом объеме определялась по «широкополосным» КАРС-спектрам. Совокупность экспериментальных данных позволяла получать информацию о ширине контуров спектральных линий, температуре и давлении в камере сгорания в момент КАРС-зондирования.

Ключевые слова: когерентное антистоксово рассеяние света, коэффициенты столкновительного уширения, интерферометр Фабри–Перо, термометрия горения, водородно-кислородное горение.

1. Введение

Одной из важных задач диагностики пламен в камерах сгорания различных типов является определение пространственных распределений температуры и концентраций разных компонентов газовой смеси [1, 2]. Для измерения температуры с помощью КАРС-спектроскопии обычно используется процедура подгонки, в которой экспериментальный спектр «пробной» молекулы сравнивается с модельными спектрами, рассчитанными при известных температурах. Исходя из наилучшего совпадения экспериментального спектра с одним из расчетных, можно сделать вывод, что температуры, соответствующие этим спектрам, равны. Точность определения температуры в такой процедуре зависит от надежности и полноты знания молекулярных спектроскопических констант, коэффициентов столкновительного уширения спектральных линий с учетом их температурной зависимости и концентраций молекул, сталкивающихся с «пробной» молекулой.

При исследованиях водородосодержащих пламен удобно использовать в качестве «пробных» молекулы водорода, поскольку молекулярные константы, сечение комбинационного рассеяния и коэффициенты самоуширения при температурах менее 1000 К для водорода хорошо известны [3, 4]. Однако получение данных по уширению переходов водорода в столкновениях как с соб-

ственными, так и с иными молекулами при высоких температурах (более 1000 К) все еще остается актуальной проблемой. Так, например, коэффициенты уширения спектральных линий водорода при столкновениях молекул водорода с молекулами N_2 , H_2 и H_2O были измерены в [5, 6] для температур вплоть до 1800 К. Измерения проводились в нагреваемой кювете высокого давления в стационарных условиях. При этом в [6] отмечалось, что главной причиной, определяющей верхний предел температуры в кювете, является высокая химическая активность молекул водяного пара.

Возможной альтернативой измерениям в стационарной нагреваемой кювете служат измерения непосредственно в водородно-кислородной камере сгорания с контролируемыми параметрами, где возможно достижение более высоких температур (до 3000 К) при непрерывном обновлении среды. Планируя проведение подобных экспериментов, мы опирались на результаты более ранних измерений коэффициентов уширения γ линий молекул водорода при их столкновениях с молекулами H_2 ($\gamma_1 = 6 \times 10^{-3} \text{ см}^{-1} \cdot \text{Амага}^{-1}$ [4]) и с молекулами H_2O ($\gamma_2 = 22 \times 10^{-3} \text{ см}^{-1} \cdot \text{Амага}^{-1}$ [5, 6]), полученные при температурах не более 1800 К. Мы также воспользовались результатами модельных вычислений, проведенных авторами работы [7], на основе которых они экстраполировали экспериментальные данные [5, 6] в область температур до 3000 К. По их оценкам коэффициенты уширения спектральных линий возрастают с увеличением температуры ($\gamma_2 \sim 70 \times 10^{-3} \text{ см}^{-1} \cdot \text{Амага}^{-1}$) и сохраняется выраженной зависимость ширин линий от вращательного квантового числа J (J -зависимость). Доплеровская ширина линий Q-ветви молекул водорода Γ_D при 2500–3000 К составляет приблизительно $115 \times 10^{-3} \text{ см}^{-1}$. Используя эти данные и принимая во внимание тот факт, что продукты сгорания смеси H_2-O_2 при таких температурах содержат приблизительно 80 % водяного пара [8],

К.А.Верещагин, А.К.Верещагин, В.В.Смирнов, О.М.Стельмах, 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, vif@kapella.gpi.ru
W.Clauss, D.N.Klimenko, M.Oschwald. German Aerospace Research Center, DLR, Langer Grund, D-74239, Hardthausen, Germany

Поступила в редакцию 11 ноября 2004 г.

можно предположить, что при плотности паров воды более 1 Амага линии Q-ветви будут однородно уширены, в основном за счет столкновений молекул водорода с молекулами воды.

Таким образом, для измерений коэффициентов уширения достаточно изменять плотность паров воды в диапазоне 1–10 Амага. При этом давление в камере сгорания составит $\sim 100 - 200$ атм. Поскольку реализация таких условий в непрерывном режиме горения технически трудновыполнима, нами была разработана конструкция водородно-кислородной камеры сгорания высокого давления, предназначенной для работы в импульсно-периодическом режиме (до 10 Гц) (импульсно-периодическая камера). Это устройство с маленьким ($\sim 2 \text{ см}^3$) объемом камеры и начальным давлением рабочей смеси до 20 атм дает возможность получать высокие (~ 200 атм) давления продуктов сгорания при температурах до 3000 К. Такая конструкция позволяет избежать проблем, связанных как с химической активностью продуктов сгорания, так и с перегревом устройства, и проводить измерения непрерывно в течение нескольких часов при минимальном потреблении топлива и окислителя.

В данной статье приводятся результаты измерения ширин отдельных линий Q-ветви молекул водорода, обусловленных столкновениями молекул водорода с молекулами воды при $T = 2700 \text{ К}$, полученные с применением импульсно-периодической водородно-кислородной камеры сгорания высокого давления с контролируемыми и измеряемыми давлением и температурой.

При импульсном режиме работы и нестационарных условиях в камере сгорания необходимо, чтобы все измерения были выполнены в течение одного лазерного импульса, синхронизованного с циклом горения. Для этих измерений была создана диагностическая система с тремя каналами регистрации. Первый канал предназначен для измерения ширин отдельных линий КАРС-спектра Q-ветви молекул водорода, и в нем используется им-

пульсный «узкополосный» КАРС-спектрометр, настраиваемый на переход выбранной линии. Анализ формы контуров линий проводится с помощью интерферометра Фабри–Перо. (Подобный подход был недавно осуществлен для исследования ширин линий молекул дейтерия в ударной трубе [9].) Второй канал предназначен для измерения температуры в камере сгорания. Для этого применяется «широкополосный» КАРС-спектрометр, с помощью которого одновременно регистрируются все линии спектра Q-ветви молекул водорода и спектр Q-ветви колебания ν_1 молекул воды. Спектральная информация в обоих каналах детектируется посредством оптических многоканальных анализаторов. В третьем канале записывается временное поведение давления в камере сгорания, лазерный импульс в момент КАРС-зондирования и данные по расходам топлива и окислителя. Таким образом, за один цикл работы импульсной камеры сгорания можно получить информацию о форме контуров спектральных линий, температуре и давлении в исследуемом объеме в момент КАРС-зондирования.

2. Экспериментальная установка

2.1. Импульсная горелка

Импульсная горелка сконструирована следующим образом (рис.1). Камера сгорания имеет цилиндрическую форму и изготовлена из нержавеющей стали. Диаметр цилиндра составлял 15 мм, длина – 10 мм. В его верхнюю часть и в основание вмонтированы свеча зажигания и датчик давления. Газы H_2 и O_2 подаются в камеру сгорания через две магистрали, каждая из которых содержит импульсный электромагнитный клапан, обратный клапан, регуляторы и измерители входного давления и протока газов, а также буферный резервуар объемом 2 л. Входное давление каждого из газов может изменяться в пределах 1–30 атм.

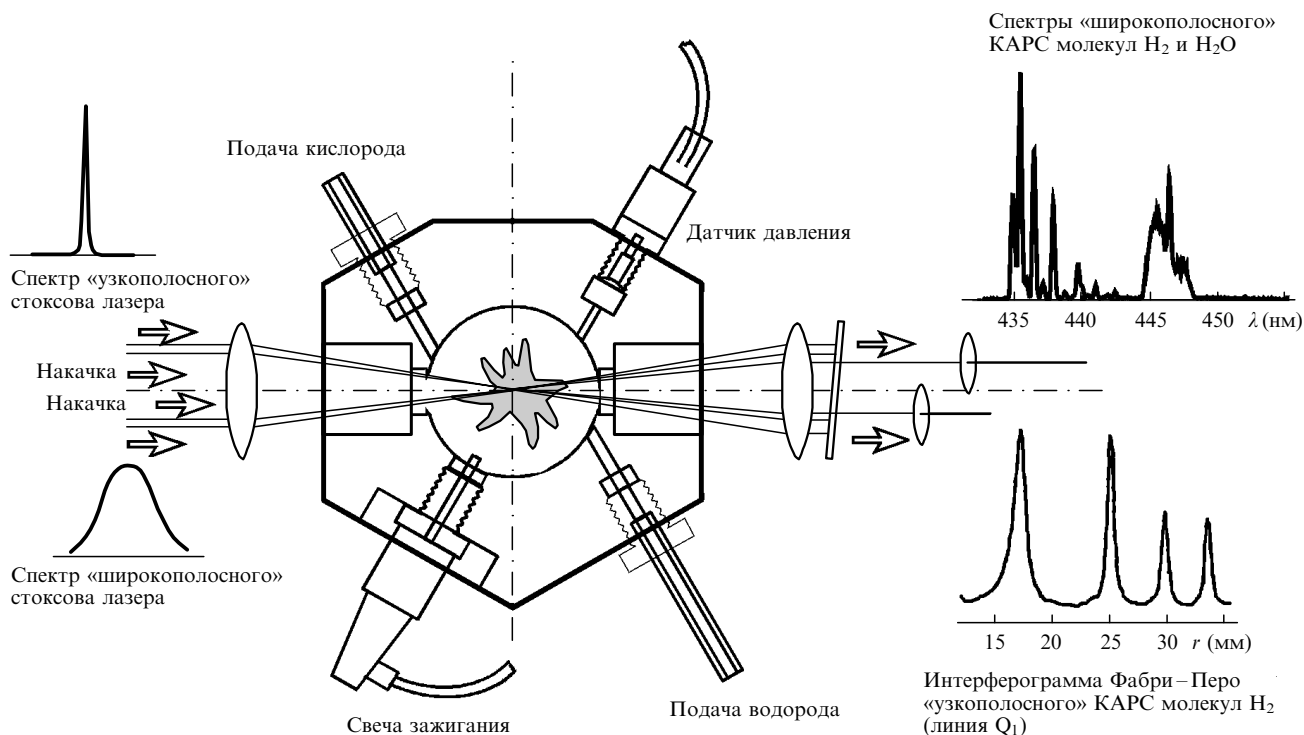


Рис.1. Схема трехканального зондирования импульсной водородно-кислородной камеры сгорания высокого давления.

В цилиндрической поверхности камеры сгорания имеются два соосных, постоянно открытых отверстия диаметром 1.4 мм. Поперечные сечения этих отверстий намного меньше сечений магистралей подачи газов, так что на стадии напуска газов, когда электромагнитные клапаны открыты, давление в камере сгорания близко к давлению напуска. После закрытия электромагнитных клапанов горючая смесь поджигается свечой зажигания, за нескольких микросекунд сгорает, и давление и температура в камере возрастают на порядок относительно исходных. Затем в течение нескольких миллисекунд продукты сгорания истекают из камеры в окружающую атмосферу через выпускные отверстия, обеспечивая, тем самым, плавное уменьшение давления в зондируемом объеме и очистку камеры между двумя последовательными циклами горения. Те же самые отверстия используются для ввода и вывода световых пучков.

Электронная схема управляет клапанами, генерирует импульс поджига для свечи зажигания и обеспечивает набор триггерных импульсов для синхронизации лазеров и системы сбора данных. Электронный блок управления позволяет независимо изменять время нахождения любого из клапанов в открытом состоянии в диапазоне 10–100 мс, задержку между моментами их открытия, а также задержку импульса искры. Из соображений безопасности смесь поджигается после того, как оба клапана закрыты.

Важный параметр, влияющий на достигаемые в камере сгорания давление и температуру, – соотношение начальных концентраций топлива и окислителя. Этот параметр определяется путем измерений объемных расходов обоих компонентов горючей смеси; соотношение концентраций может меняться за счет изменения входных давлений для каждого из газов.

2.2. Лазеры и системы регистрации

Два канала КАРС-зондирования различаются как по спектральным свойствам используемых стоксовых лазеров, так и по способам регистрации и анализа спектров КАРС. В качестве источника накачки процессов КАРС и стоксовых лазеров в обоих каналах используется излучение второй гармоники одночастотного (ширина спектра ~100 МГц) Nd³⁺:YAG-лазера Infinity фирмы Coherent Radiation. Типичная выходная энергия импульса длительностью 3 нс на длине волны излучения 532 нм равна 100–120 мДж и распределяется следующим образом. Энергия волн накачки процесса КАРС составляет 10–15 мДж на один канал. На накачку каждого из стоксовых лазеров затрачивается энергия 25 мДж. Оба стоксовых лазера имеют подобные схемы генератор–усилитель, и в обоих используется раствор органического красителя Pyridine в метаноле.

Резонатор генератора стоксового лазера в первом канале состоит из выходного зеркала, дифракционной решетки, работающей под скольльзящим углом падения, и заднего зеркала. Генератор имеет поперечную накачку, и его излучение усиливается в однопроходном усилителе также с поперечной накачкой. Энергия на выходе этого лазера составляет ~3 мДж при ширине его спектра излучения ~5 см⁻¹. Такая ширина спектра, с одной стороны, значительно больше ширины любой линии Q-ветви, а с другой стороны, меньше частотного расстояния между соседними линиями в спектре. Это позволяет регистрировать весь контур отдельной выбранной спектральной линии за одну лазерную вспышку. При настройке сток-

сова лазера на отдельные переходы Q-ветви используется измеритель лазерных длин волн LM-007 фирмы ATOS GmbH. Спектральный анализ КАРС-сигнала в первом канале проводится с помощью интерферометра Фабри–Перо ЛОМО ИТ-28-30 (алюминиевые зеркала с коэффициентом отражения 92 %, область свободной дисперсии 0.5 см⁻¹) с регистрацией интерференционной картины многоканальным линейным фотоприемником.

Генератор стоксового лазера во втором канале, который используется для измерения температуры, представляет собой «безмодовый» генератор с поперечной накачкой, собранный по схеме двухпроходного усилителя с одним задним зеркалом. Излучение генератора усиливается в однопроходном усилителе на красителе с поперечной накачкой. Его выходная энергия составляет ~3 мДж при ширине спектра более 500 см⁻¹, что позволяет одновременно регистрировать КАРС-спектры Q-ветвей молекул как водорода, так и воды. Спектральный анализ КАРС-сигнала осуществляется решеточным спектрографом HR 460 (дифракционная решетка 1200 штр./мм, фокусное расстояние 460 мм) фирмы Jobin–Ivon и многоканальным линейным фотоприемником.

Для повышения пространственного разрешения в каждом из КАРС-каналов используется геометрия взаимодействия лазерных лучей «планарный КАРС». При этом пучок накачки и стоксов пучок распространяются параллельно на расстоянии приблизительно 10 мм друг от друга. При фокусировке этих пучков линзой ($f = 300$ мм) они пересекаются в фокальной области под небольшим углом, что позволяет избежать генерации сигналов КАРС в областях среды, находящихся вне зондируемого объема. Две пары пучков накачки КАРС (первого и второго каналов) также пересекаются в зондируемом объеме под небольшим углом, что обеспечивает их пространственное разделение по каналам для отдельной регистрации. Кроме того, лазерные импульсы первого канала задержаны приблизительно на 7 нс относительно импульсов второго, чтобы избежать какого-либо влияния одного канала на другой.

Третий канал используется для измерений давления в камере сгорания на стадиях напуска, горения и истечения продуктов в каждом рабочем цикле. Эти измерения выполняются пьезоэлектрическим датчиком давления 6061В фирмы Kistler, вмонтированным в стенку камеры сгорания. Сигнал с датчика усиливается широкополосным зарядовым усилителем. Динамический диапазон и время отклика датчика позволяют измерять давление в течение относительно медленных стадий напуска, а также контролировать быстрое изменение давления на стадиях горения и истечения. Перед измерениями датчик калибруется в диапазоне 1–150 атм.

В эксперименте сигнал с усилителя датчика давления оцифровывается двухканальным АЦП и сохраняется на жестком диске компьютера; второй канал АЦП используется для оцифровки сигнала быстрого фотодиода, который регистрирует лазерный импульс. Благодаря такой двухканальной регистрации можно определять давление именно в момент КАРС-зондирования камеры сгорания. Генератор задержки позволяет изменять время между моментами поджига смеси и КАРС-зондирования. Это дает возможность проводить измерения при различных плотностях, которые изменяются во времени вследствие истечения продуктов сгорания из камеры через выпускные отверстия.

3. Результаты и их обсуждение

Эксперимент выполнялся следующим образом. Устанавливались заданные давления и объемные расходы потоков H_2 и O_2 . Горелка работала с частотой повторения 1 Гц. Длина волны «узкополосного» стоксова лазера настраивалась соответственно частоте комбинационного сдвига одной из нечетных ($J = 1, 3, 5, 7$) линий Q-ветви молекул водорода, а диапазон длин волн «широкополосного» лазера выбирался с учетом его перекрытия с линиями Q-ветви молекул водорода и полосы ν_1 молекул воды. После установления выбранной задержки между моментами воспламенения и лазерными импульсами зондирования записывались 50 синхронизованных (как с поджигом, так и между собой) файлов с данными из трех каналов. После записи данных менялись или расходы газов, или стоксова длина волны в первом канале, или задержка между воспламенением и зондированием и измерения проводились снова.

Предварительный анализ данных, полученных при одинаковых начальных давлениях напуска и задержках, показал, что температуры и давления по окончании горения в различных циклах могут различаться на 30%. Ввиду этого нами была применена следующая методика обработки данных. На первом этапе для предварительного определения температуры спектры КАРС Q-ветви молекул водорода обрабатывались в предположении отсутствия J -зависимости ширин спектральных линий. Найденные таким образом абсолютные значения температур систематически отклоняются от правильных значений. Однако эти грубые оценки температуры необходимы для дальнейшей селекции файлов данных по рабочим циклам камеры сгорания, в которых реализовались одинаковые значения температуры и давления. Выбранные после такой селекции файлы использовались для дальнейшего усреднения данных по ширинам линий $Q_1 - Q_7$, полученных в отдельных циклах работы. На втором этапе обработки данные по ширинам линий и их J -зависимости использовались для аппроксимации КАРС-спектров и корректного определения газовой температуры.

В результате этой процедуры для определенного давления находятся средние по отселектированным выборкам значения температуры, ширин линий и их J -зависимости. Однако для измерения коэффициентов уширения и их температурной зависимости необходимо иметь такой набор данных для разных давлений и температур. С целью исследования динамического диапазона вариаций этих параметров нами были рассмотрены эксплуатационные режимы работы импульсной камеры сгорания и выбраны оптимальные условия ее использования для измерений ширин линий.

Здесь следует обратить внимание на следующие обстоятельства. Для получения удовлетворительного отношения сигнал/шум в КАРС-каналах требуется иметь в зондируемом объеме достаточное количество водорода, что приводит к необходимости работать с обогащенными смесями. Однако в этом случае горелка не во всех режимах работает стабильно и устойчиво. Мы экспериментально определили условия ее стабильной работы на богатых смесях и в дальнейшем использовали преимущественно эти режимы. Оптимальный режим стабильной работы горелки соответствовал температуре 2700 К при коэффициенте избытка окислителя $\alpha = 0.45$. Попытки менять температуру путем изменения соотношения топ-

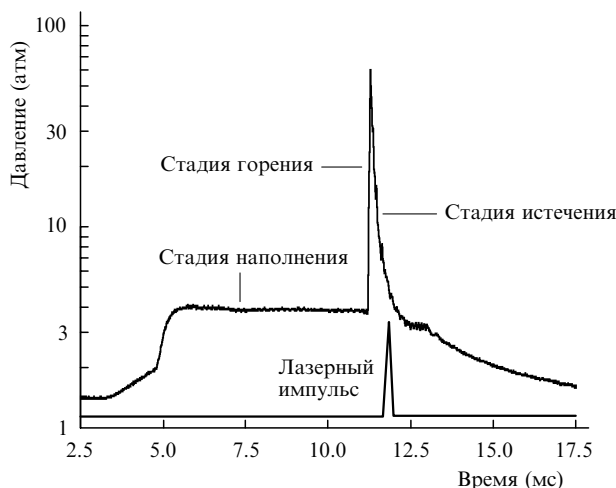


Рис.2. Временное поведение давления в камере.

лива и окислителя за счет обогащения смеси позволили лишь снизить ее от 2700 до 2000 К. Поэтому в рамках данной работы мы, ориентируясь на высокотемпературные режимы, ограничились измерениями коэффициентов уширения при температуре 2700 ± 200 К.

Для этой стехиометрии смеси были промерены давления внутри камеры сгорания на стадиях напуска газов, горения и истечения продуктов сгорания из камеры через постоянно открытые выходные отверстия. Типичное временное поведение давления представлено на рис.2. В течение приблизительно 10 мс камера заполняется, и стационарное давление внутри нее может быть установлено в диапазоне 5–20 атм. После воспламенения давление в течение нескольких микросекунд повышается до 50–200 атм. Затем, в результате истечения продуктов сгорания через отверстия, давление в камере за несколько миллисекунд падает до давления окружающей среды (атмосферного). При этом флуктуации пиковых значений давления от импульса к импульсу не превышают 10%.

Температурные измерения в камере, выполненные при заданной стехиометрии смеси, показали, что при изменении времени задержки между воспламенением и зондированием в диапазоне 30–180 мкс температура продуктов внутри камеры сгорания остается почти постоянной (рис.3) и не зависит от давления наполнения камеры. За это время давление внутри камеры падает примерно в два раза (см. рис.2, 3). С учетом возможности изменения

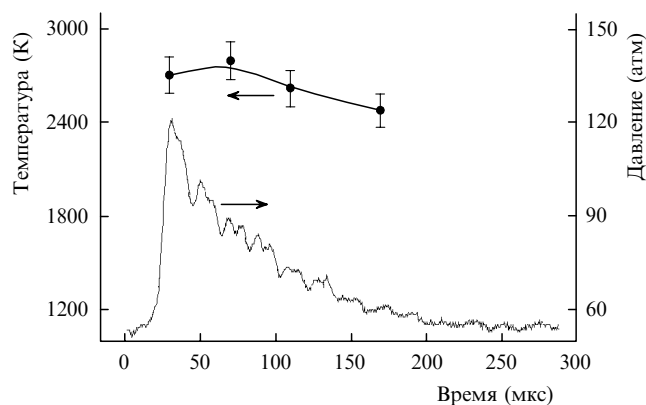


Рис.3. Временное поведение температуры и давления в камере сгорания на стадии истечения продуктов.

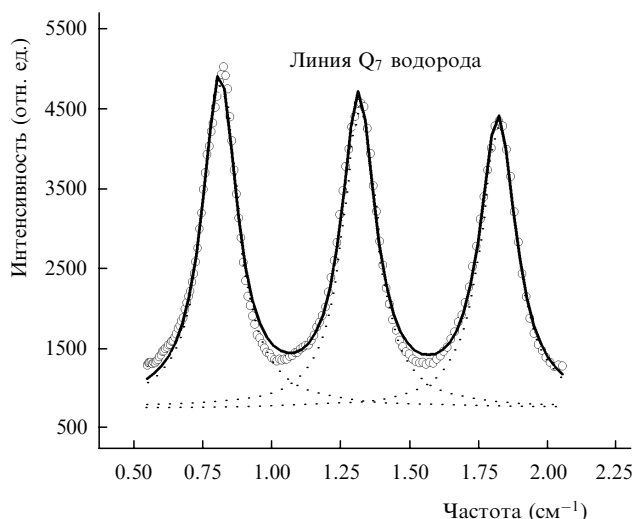


Рис.4. Линеаризованные интерферограммы «узкополосного» канала КАРС для линии Q_7 . Точки – эксперимент, пунктирные кривые – наилучшая аппроксимация лоренцевскими контурами интерференционных максимумов, сплошная кривая – огибающая интерферограммы, полученная на основе наилучшей подгонки.

давления наполнения в четыре раза (5–20 атм) полный динамический диапазон вариаций давления продуктов сгорания при постоянной температуре составит 8. Таким образом, можно сделать вывод о том, что в этой горелке возможны измерения коэффициентов столкновительного уширения линий водорода молекулами воды при постоянной температуре в диапазоне плотностей паров воды 1–8 Амага.

Для измерения собственно ширин линий усредненные интерферограммы Фабри–Перо приводились к линейной по радиальной координате шкале, на которой расстояния между интерференционными максимумами эквидистантны. В этом случае профили интерференционных полос описываются лоренцевским контуром, параметры которого, в том числе и полуширина на полувысоте, определялись подгонкой спектральных профилей методом наименьших квадратов. Линеаризованные интерферограммы Фабри–Перо для $J=7$ и результаты аппроксимации их лоренцевскими контурами показаны на рис.4. Для определения аппаратной функции интерферометр освещался излучением КАРС, полученным в кю-

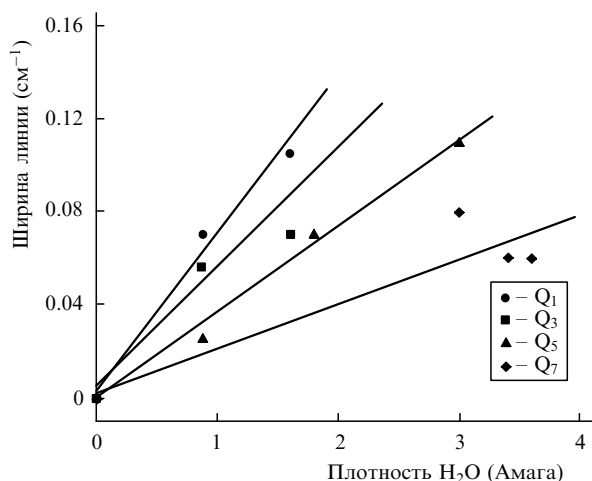


Рис.5. Зависимости ширин на полувысоте линий Q-ветви молекул водорода от плотности водяного пара при температуре 2700 К.

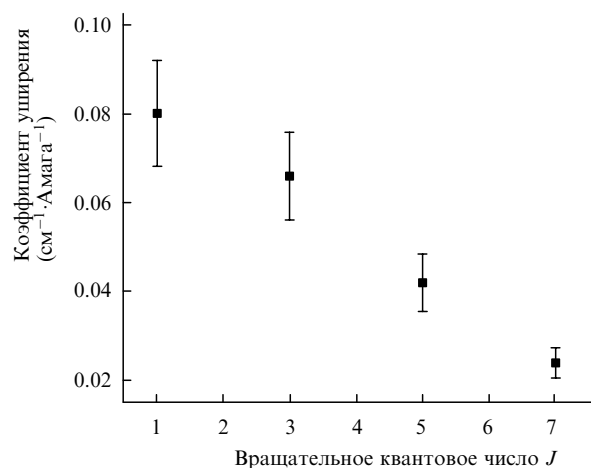


Рис.6. Коэффициенты столкновительного уширения, полученные при температуре 2700 К, для линий Q-ветви молекул водорода с различными вращательными квантовыми числами J .

вете, содержащей водород при давлении 1 атм и комнатной температуре. При этих условиях (область сужения Дике) линия Q_1 спектра КАРС имеет ширину на полувысоте $\sim 0.012 \text{ см}^{-1}$ [4]. Наши измерения показали, что при базе интерферометра 1 см его резкость составляла 15 и аппаратная функция имела ширину на полувысоте 0.033 см^{-1} . Измеренная аппаратная функция была принята во внимание при обработке интерферограмм Фабри–Перо.

Измерения ширин линий для нечетных значений J от 1 до 7 были выполнены при температуре 2700 К для трех различных диапазонов давлений (задержек между воспламенением и зондированием). Для определения коэффициентов уширения спектральных линий необходимо знать плотность паров воды в камере сгорания в момент зондирования. В нашем случае мы оценивали ее из таблиц [8], исходя из измеренных значений температуры, общего давления в камере и начальных соотношений топлива и окислителя. На рис.5 представлены результаты измерений ширин линий Q-ветви молекул водорода для $J=1, 3, 5, 7$ в зависимости от плотности паров воды. Полученные по этим данным коэффициенты уширения представлены на рис.6. Следует отметить, что наши результаты находятся в хорошем согласии с расчетной экстраполяцией к 3000 К данных по коэффициентам уширения [7], экспериментально полученным в [5, 6] в диапазоне 600–1800 К.

4. Заключение

В настоящей работе измерены ширины линий вращательных компонент КАРС-спектров Q-ветви молекул водорода при температуре 2700 К в диапазоне плотностей водяного пара 1–4 Амага в условиях, когда они определяются, главным образом, столкновениями молекул водорода с молекулами воды. Для спектрального анализа контуров линий мы применили методику КАРС-спектроскопии, в которой спектры излучения КАРС отдельной вращательной линии исследовались с помощью интерферометра Фабри–Перо и многоканального фотоприемника. Температура измерялась посредством дополнительного спектрометра, построенного по схеме «широкополосного» КАРС.

Полученные коэффициенты уширения находятся в хорошем согласии с данными работы [5–7], где измерения

проводились при более низких температурах и давлениях.

Измерения при столь высоких температурах и давлениях стали возможны благодаря использованию специально разработанной импульсной H_2-O_2 -камеры сгорания. Созданный измерительно-диагностический комплекс позволял синхронно проводить измерения ширины спектральных контуров, температур и давлений в камере сгорания.

1. Greenhalgh D.A., in *Advances in Nonlinear Spectroscopy* Ed. by R.J.H.Clark, R.E.Hester (Chichester: John Wiley & Sons, 1988, vol. 15).
2. Anderson T.J., Eckbreth A.C. *AIAA paper No. 90-0158* (1990).
3. *Спектроскопия комбинационного рассеяния света в газах и жидкостях*. Под ред. А.Вебера (М.: Мир, 1982).
4. Rahn L.A., Farrow R.L., Rosasco G.J. *Phys. Rev. A*, **43**, 6075 (1991).
5. Berger J.-P. *These de Doctorat* (Universite de Bourgogne, Dijon, France, 1994).
6. Michaut X., Berger J.-P., Saint-Loup R., Chaussard F., Berger H. *Proc. Conf. «Combustion Dans Les Moteurs Fusees»* (Toulouse, France, 2001).
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. *Термодинамические и теплофизические свойства продуктов сгорания. Справочник*. Под ред. В.П.Глушко (М.: ВИНТИ, 1972).
9. Gillespie W.D., Hahn J.W., Bowers W.J., Hurst W.S. Jr., Rosasco G.J. *Appl. Opt.*, **38** (3), 534 (1999).