

激光能量密度对激光诱导炽光技术测试碳烟粒径的影响

高永利¹, 何旭¹, 李红梅¹, 刘凤山², 李向荣¹, 刘福水¹

(1. 北京理工大学机械与车辆学院, 北京 100081;
2. 加拿大国立研究院测量科学与标准, 渥太华 K1A0R6)

摘要: 激光诱导炽光(Laser Induced Incandescence, LII)技术, 由于其具有高的时间和空间分辨率, 被认为是一种适合于测试碳烟浓度的技术, 也可以用来测试碳烟主小球粒径。在 LII 测试过程中, 不同激光能量密度对测试精度影响很大, 高激光能量密度具有较高的信噪比, 但是对于碳烟粒径测试, 为了避免升华, 应尽量使用低的激光能量密度。具体在利用激光诱导炽光技术推断碳烟粒径的实验中所用的低能量密度为何值, 需要结合理论模型分析和实验进行确定。首先基于 LII 测试过程的数学模型进行了理论分析, 然后在乙烯层流扩散火焰的相同位置上, 测试得到了不同激光能量密度下的碳烟主小球粒径, 分析确定了测试所需的最佳激光能量密度。为进一步测试碳烟的主小球粒径奠定了基础。

关键词: 激光诱导炽光; 激光能量密度; 碳烟; 主小球粒径

中图分类号: TK39 文献标志码: A 文章编号: 1007-2276(2014)08-2425-06

Impact of laser fluence on test of soot particle size by laser induced incandescence

Gao Yongli¹, He Xu¹, Li Hongmei¹, Liu Fengshan², Li Xiangrong¹, Liu Fushui¹

(1. School of Mechanical Engineering, Beijing Institute of Technology, Beijing 100081, China;
2. Measurement Science and Standards, National Research Council, Ottawa K1A0R6, Canada)

Abstract: Laser Induced Incandescence (LII) is considered a very effective method for soot volume fraction measurement and can also be used to measure primary soot particle diameter with high spatial and temporal resolution. The laser fluence can potentially have a significant influence on the measured results. A high laser fluence in general results in a higher signal-to-noise ratio. But for soot particle size measurement, lower laser fluences should be used in order to avoid soot sublimation. To determine the optimal values of laser energy during the experiment, a combined approach of theoretical analysis and experiment was required. A mathematical model was established and analyzed firstly, then the primary particle size was measured using different laser fluences in the same position of a coflow ethylene/air laminar diffusion flame. Lastly, the optimal laser fluence was determined in the flame conditions investigated. This article laid the foundation for further investigations of the primary soot particle size measurement using low-fluence LII.

Key words: laser induced incandescence; laser fluence; soot; primary particle size

收稿日期: 2013-12-10; 修订日期: 2014-01-15

基金项目: 北京理工大学优秀青年教师资助计划(2011YR0306); 高等学校学科创新引智计划(B12022)

作者简介: 高永利(1990-), 男, 博士生, 主要从事激光诱导炽光研究碳烟特性方面的研究。Email: gaoyl1324@126.com

导师简介: 何旭(1976-), 男, 副研究员, 主要从事燃烧过程的激光测试方面的研究。Email: hhexxu@bit.edu.cn

0 引言

近年来,碳烟微粒作为环境的污染物越来越受到人们的重视,碳烟对人体的危害程度与粒径有很大的关系^[1]。得知碳烟粒径信息可以更加深入地评价和研究碳烟的危害,有助于了解碳烟生成机理。但是到目前为止仍然缺乏适当的快速测试方法。

激光诱导炽光技术 (Laser Induced Incandescence, LII) 属于光学测试技术,响应时间极短,具有很高的时间和空间分辨率,对于碳烟测试是一种很有发展前景的技术。国外很多学者致力于对 LII 测试技术的研究。1984 年 Melton 发表了第一篇基于激光加热的碳烟诊断技术的文章^[2]。第一次将 LII 技术用于碳烟粒径定量测试的是 Will 等人^[3]。因为 Will 等人的工作,近 20 年来,运用 LII 技术来推断碳烟初始粒径信息的方法不断涌现^[4]。国内也逐步开始了对 LII 技术的研究,并取得了一定的成果,参见参考文献 [5-8]。而激光能量作为 LII 技术的核心问题之一对 LII 的发展有至关重要的作用,值得深入研究。

激光能量密度对 LII 测试过程有很大的影响,高的能量密度能加热碳烟粒子到更高的温度,LII 信号更强,信噪比更高。传统 LII 方法均使用高能量密度的激光加热碳烟粒子,目的是为了保证碳烟粒子温度到达升华极限内,额外的激光能量转化成升华能量,使碳烟粒子在激光脉冲内的温度(信号)不随激光能量变化。当将 LII 技术用于碳烟体积分测试时,所用的都是高能量密度的激光,目的是为了保证在平原区(LII 信号不随激光能量密度变化)对碳烟进行测试,因为此时可以认为结果不受激光消光和激光能量波动的影响。

但是对于碳烟主小球粒径测试,用高能量密度激光加热碳烟粒子是不合理的,如果使用高能量密度激光会破坏碳烟粒子源,使碳烟粒径减小,严重影响测试精度。此外,因为 LII 技术推测碳烟粒径的基础是测试过程的数值模型,其中升华项的理论模型还存在很大的不确定性,所以应尽量避免升华的出现。研究表明,最好的方法就是利用低能量密度激光加热碳烟粒子^[9]。

自适应 LII (Autocompensating Laser Induced Incandescence, AC-LII) 技术是 Smallwood 和 Snelling

等人^[9]提出的一种新的 LII 技术,综合运用低能量密度 LII 和双色 LII,通过信号绝对强度标定方法使测试不依赖于激光能量密度、测试模型因素实现自适应,用低能量的激光加热碳烟粒子,使粒子的温度在升华极限以下,避免碳烟粒子的升华,从而避免破坏测试源,同时又避免了到目前为止仍存在很大不确定性的升华项,大大提高了测试精度。但是同时,因为 LII 信号来自于辐射,入射激光能量密度越大,辐射能量也越大,得到的辐射信号越强,LII 信号越强。所以确定所用低激光能量密度应综合考虑测试精度和信噪比。

文中首先基于 LII 模型,分析了激光能量密度对 LII 测试过程的影响,得到理论的低能量密度临界值,然后实验研究了不同能量密度下测得的碳烟粒径,确定最终实验所用激光能量密度。

1 激光能量密度影响的仿真分析

1.1 碳烟主小球粒径测试的数学模型

研究激光能量对碳烟主小球粒径的影响,需要对激光加热碳烟粒子的过程进行数值模拟。文中所用的假设及数学模型主要参考文献[8]。此处只做简要描述。

能量守恒方程为:

$$\frac{4\pi D(t)E(m)}{\lambda_{ex}} q(t) - \frac{16\pi D(t)E(m)}{\lambda_{ex}} \sigma [T(t)^4 - T_0^4] - \frac{8K_a}{D(t)+G} [T(t)-T_0] - 400 \left(\frac{\Delta H_v}{W_s} \right) \left(\frac{W_v}{2RT(t)} \right) P^* \exp \left[\frac{\Delta H_v (T(t)-T^*)}{RT(t)T^*} \right] - \frac{2}{3} c_s \rho_s D(t) \frac{dT(t)}{dt} = 0 \quad (1)$$

式中:各项分别为吸收激光能量、辐射能量、与周围环境之间的传热能量、升华带走的能量以及内能的变化。

当激光脉冲结束后,公式(1)中的激光能量吸收项为 0;若使用较低的激光能量加热粒子,使粒子的温度在升华极限以下,则升华能量项为 0;辐射能量相较其他项所占比例很小,则粒子内能的变化主要是由向环境传热引起的,简化方公式(1)变为:

$$-\frac{8\pi K_a}{D(t)+G} [T(t)-T_0] - \frac{2}{3} c_s \rho_s D(t) \frac{dT(t)}{dt} = 0 \quad (2)$$

由于粒子未发生升华,则粒径 $D(t)$ 为常数,即为主小球粒径 D ;在大气压下的火焰环境中周围气体

的平均自由程 l 远大于粒子直径 D 。上式简化整理得：

$$\frac{d \ln [T(t) - T_0]}{dt} = - \frac{12K_a}{Glc_s \rho_s D} \quad (3)$$

对于单分散粒子,在温度衰减过程中,粒子温度 T 和环境温度 T_0 之差遵循一个简单的指数函数：

$$T(t) - T_0 = A \cdot e^{-t/\tau} \quad (4)$$

粒子的温度 T 可以根据双色测温法^[10]得到：

$$T = \frac{hc}{k} \left(\frac{1}{\lambda_2} - \frac{1}{\lambda_1} \right) \left\{ \ln \left[\frac{V_{EXP1}}{V_{EXP2}} \frac{\eta_1}{\eta_2} \frac{G_{EXP2}}{G_{EXP1}} \frac{\lambda_1^6}{\lambda_2^6} \right] \right\}^{-1} \quad (5)$$

得到碳烟主小球粒径：

$$D = \frac{12K_a \tau}{Glc_s \rho_s} \quad (6)$$

式中： h 为普朗克常数, $h=6.626 \times 10^{-34} \text{ J} \cdot \text{S}$ ； c 为光速, $c=2.998 \times 10^8 \text{ m/s}$ ； k 为玻耳兹曼常数, $k=1.381 \times 10^{-23} \text{ J/K}$ ； λ_1 、 λ_2 为两个探测中心波长, m ； V_{EXP1} 、 V_{EXP2} 为实验种不同波长下示波器的电压信号, mV ； G_{EXP1} 、 G_{EXP2} 为实验中 PMT 的增益； η_1 、 η_2 为不同探测波长下的校准因子。

基于参考文献[8]中所用的 LII 模型,改变入射激光的能量密度函数 $q(t)$ 的最大值,可以理论分析激光能量密度对 LII 测试过程的影响,同时理论确定低能量密度临界值。

参考文献[8]中为验证 LII 模型的有效性,选用的 $q(t)$ 为 Melton 文章中所用的三角脉冲,但考虑到文中用的实际是 Nd:YAG 激光器,激光服从高斯时间分布,所以,改变了入射激光的初始条件,选用高斯分布的激光时间分布,如图 1 所示。

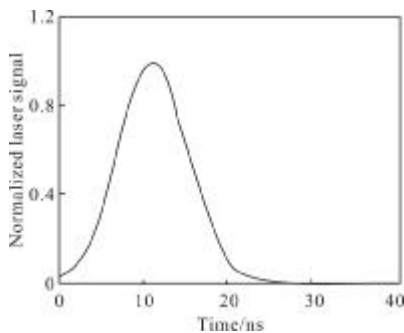


图 1 模型中所用激光时间分布

Fig.1 Laser time distribution used in model

1.2 理论确定低激光能量密度阈值

AC-LII 技术采用的低能量密度值,应在尽量避免升华发生的前提下保证较高的信噪比,当采用激

光波长 532 nm、 $q(t)$ 最大值在 106~107 W/cm² 之间、对应能量密度在 0.1~1 mJ/mm² 之间时,升华已经很小,而且辐射信号或温度最大值仍在此可接受的范围内,所以在此范围内确定低能量密度分界点。

运用参考文献[8]中所建的 LII 测试过程的数学模型对有无升华项的模型结果进行对比,找出临界能量密度。将图 1 中的激光带入数学模型中,在不同激光能量密度下,粒径 D 为 40 nm 的碳烟粒子有无升华项的理论温度结果如图 2 所示,图中实心图例代表有升华项,空心代表无升华项。

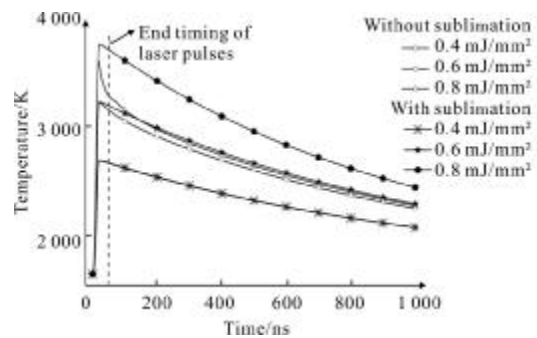


图 2 不同激光能量密度下有无升华项的理论结果对比

Fig.2 Comparison of theoretical result with sublimation or not under different laser fluences

从图 2 中可以看出,随着激光能量密度的升高,有无升华模型的结果差别越来越大,当能量密度大于 0.8 mJ/mm² 时,粒子的最高温度甚至出现差别,衰减过程差别更大。为了更直观地确定低激光能量密度值,根据图 2 计算激光脉冲结束时的碳烟粒子温度差作为是否可以省略无升华的依据,将碳烟粒子的最高温度作为信噪比的参考,如图 3 所示。

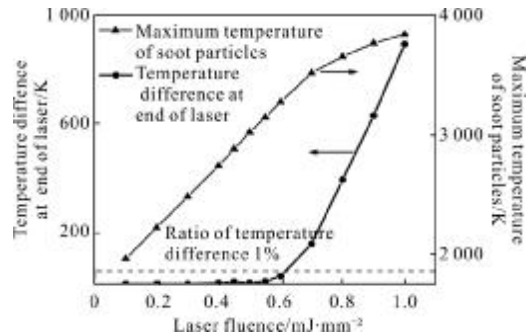


图 3 能量密度对有无升华模型结果的影响

Fig.3 Influences of laser fluences on results with sublimation or not

可以看出,碳烟粒子的最高温度随着激光能量密度的升高而升高,相应的 LII 信号强度越强;另一

方面,随着激光能量密度的升高,有无升华的温度结果差别越来越大,当激光能量密度小于 0.6 mJ/mm^2 时,有无升华模型碳烟粒子最高温度差与粒子最高温度的比值小于 1%,激光脉冲结束时有无升华模型计算得到的温度差很小,在模型中认为可以将升华项省略。所以在实际运用低能量密度时,保证升华可忽略的情况下,为得到较好的信噪比,可以选择激光能量密度在 $0.5 \sim 0.6 \text{ mJ/mm}^2$ 之间。

2 激光能量密度的影响实验

根据理论分析,低能量密度值在 $0.5 \sim 0.6 \text{ mJ/mm}^2$ 之间,实际中需要和实验系统匹配。通过实验研究确定了实际所用激光能量密度,在相同的火焰位置改变激光能量密度,分析了 LII 信号并推测得到碳烟粒径,根据推断结果确定低激光能量密度值。

2.1 实验平台

LII 用于乙烯层流扩散火焰碳烟粒径测试系统的实验示意图如图 4 所示。

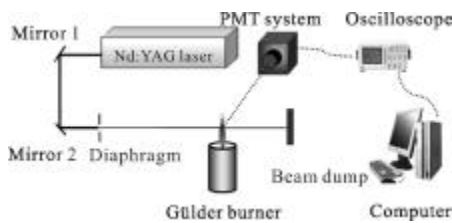


图 4 LII 测试系统示意图

Fig.4 Schematic of LII test system

激光器为 Nd:YAG 激光器,发出波长为 532 nm 、半高宽 11 ns 、频率为 10 Hz 的激光。激光束经过一系列的反射镜,经过小孔光阑形成更细的空间分布较均匀的激光束穿过火焰中心平面,光束截止器回收激光,防止激光伤人。被测对象是 Gülder 燃烧器上高度为 $64 \pm 1 \text{ mm}$ 的稳态乙烯层流扩散火焰。LII 信号被光电倍增管(Photo Multipliers Tubes, PMT)系统探测。系统由两个 PMT 组成,通过调节控制电压可以调节 PMT 增益。探测系统的轴线垂直于激光束通过的火焰中心平面。两个探测中心波长分别为 400 、 780 nm ,通过此系统可以同时得到两个探测波长下的 LII 信号,信号被示波器记录,然后传到计算机中进行进一步的信号处理。

因为火焰轴线高度(用不同燃烧器灯口上的位置,Height Above Burner, HAB 表示)为 40 mm 的火焰

碳烟特征明显,且可以与国外文献进行对比,故选用 $\text{HAB}=40 \text{ mm}$ 处作为固定火焰位置,实际中激光能量是通过改变激光器 Q 开关时间百分比来调节的。

2.2 不同激光能量密度的 LII 信号

实验所用两个探测中心波长为 400 nm 和 780 nm 下 PMT 的控制电压均为 0.5 V ,改变激光能量密度,得到 $\text{HAB}=40 \text{ mm}$ 、激光能量密度为 0.3 、 0.54 、 0.6 、 1.58 mJ/mm^2 下的 LII 信号分别如图 5(a)-(d)所示。

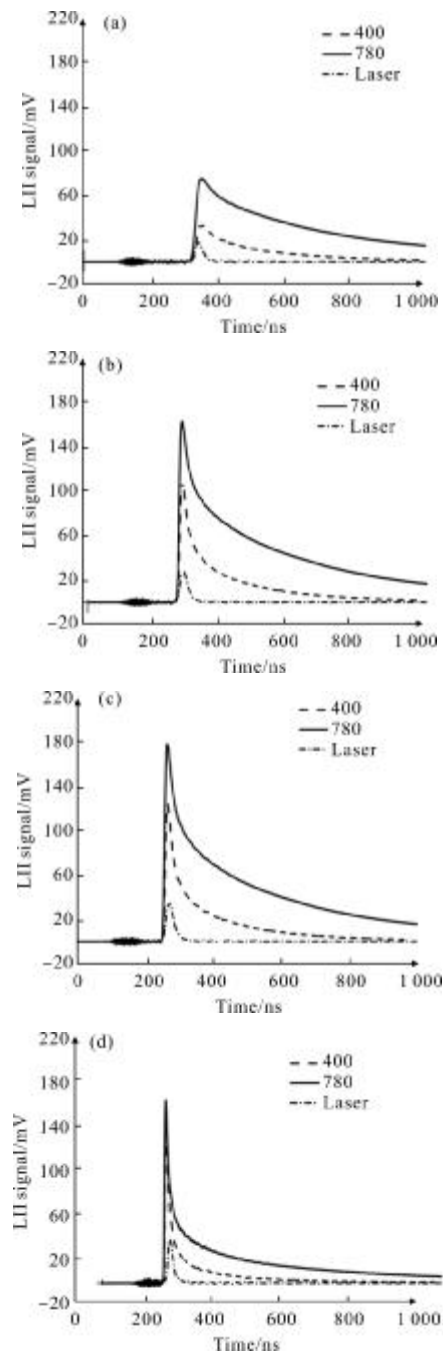


图 5 HAB=40 mm 处不同能量密度的 LII 信号

Fig.5 LII signal under different laser fluences at HAB=40 mm

实验采用同样的控制电压,增益相同,因此不同能量得到的 LII 电压信号就具有可比性。图中可以看出,低能量激光信号很弱,此时信噪比不高,得出的粒径结果不精确;而高能量激光下 LII 信号还未到激光脉冲结束就迅速衰减,表明此时粒子升华很严重,文中模型已不再适用。在 0.54 mJ/mm^2 和 0.6 mJ/mm^2 能量密度下 LII 信号较为理想。

篇幅所限,图 5 只列举了典型的 LII 信号,下面将实验中 LII 信号幅值随激光能量密度的变化总结如图 6 所示。

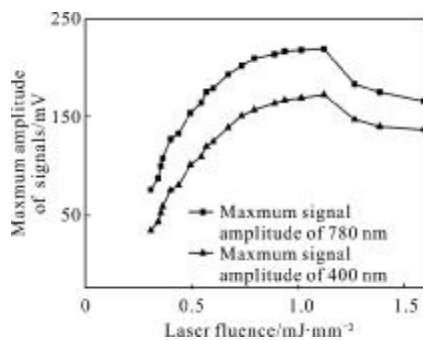


图 6 信号幅值随激光能量密度的变化

Fig.6 Signal amplitude under different laser fluences

比较分析图中不同激光能量密度的 LII 信号,可以看出,LII 信号强度在 $0.3 \sim 0.6 \text{ mJ/mm}^2$ 左右,信号强度随着激光能量呈近似线性增强;在 $0.6 \sim 1.1 \text{ mJ/mm}^2$ 左右,信号强度缓慢增加,之后开始下降。这是因为一开始能量较低,能量密度越高,碳烟吸收能量越多,且未发生升华,LII 信号随着激光能量密度的升高线性增强;到约 0.6 mJ/mm^2 之后,由于碳烟发生了升华,但激光能量仍大于升华能量,信号幅值仍随着激光能量密度的升高而缓慢增加;之后,激光能量密度越高,粒子发生强烈升华,升华能量大于激光能量,LII 信号最大值下降。

2.3 不同激光能量密度的碳烟粒径

2.2 节中得到两个波长下的 LII 信号值分别为公式(5)中的 V_{EXP1} 、 V_{EXP2} 。实验所用两个波长下的控制电压均为 0.5 V ,根据标定数据,探测中心波长为 400 nm 时的增益和校准因子分别为 $G_{\text{EXP}}=17473.72$, $\eta=3.34858 \times 10^{-14}$,探测中心波长 780 nm 时为 $G_{\text{EXP}}=17473.72$, $\eta=4.94226 \times 10^{-14}$ 。将各种参数带入公式(5)中,得出不同能量密度下碳烟粒子的温度。根据公式(4),加拿大国立研究院通过 CARS 方法得到了火焰温度,即环境

温度 T_0 为 1700 K 。然后在激光脉冲结束后的 5 ns 开始选取 100 ns 时间宽度,将碳烟粒子温度与环境温度的数值带入公式(4)并进行拟合,得到时间常数 τ ,带入公式(5)中得到不同激光能量密度下 $\text{HAB}=40 \text{ nm}$ 处的碳烟粒径,如图 7 所示。

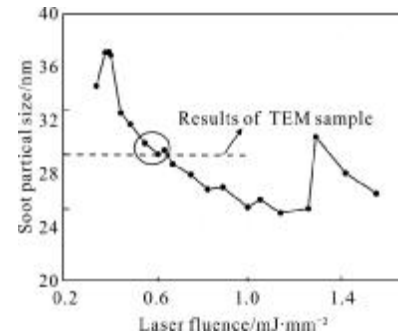


图 7 不同激光能量密度的碳烟粒径

Fig.7 Soot particle size under different laser fluences

可以看出,在 $0.3 \sim 0.45 \text{ mJ/mm}^2$ 范围内,由于激光能量很小,LII 信号很弱,信噪比差,结果出现震荡,并且结果偏高;在 1.2 mJ/mm^2 之后,通过 2.2 节中信号初步分析得知,此时粒子已经出现严重升华,碳烟粒子周围的碳蒸气影响粒子向周围环境传热,使温度的衰减速率减慢,所得到的粒径结果偏大,极不可靠。相对来说,在约 $0.45 \sim 1 \text{ mJ/mm}^2$ 范围内结果较稳定, $0.5 \sim 0.6 \text{ mJ/mm}^2$ 内的碳烟粒径结果较理想(如图中圆圈所示),随着激光能量密度变化不大。当激光能量高于 0.6 mJ/mm^2 后,随着激光能量密度的增大,由于碳烟粒子发生升华,粒径越来越小,这与理论分析结果相吻合。由于粒径测试做了很多假设,建立了很多模型,这些模型里的物理参数有很大的不确定性,导致测试结果需要结合一定标准进行比较来验证其可靠性,因此采用国际上公认的 TEM 采样方法作为标准进行验证。将实验结果与图 8

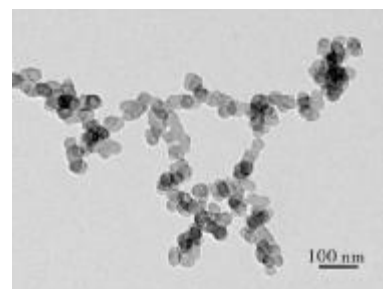


图 8 $\text{HAB}=40 \text{ nm}$ 时 TEM 采样结果

Fig.8 Results of TEM sample at $\text{HAB}=40 \text{ nm}$

中 TEM 采样分析粒径结果对比分析,发现在 0.5~0.6 mJ/mm² 范围内二者比较符合,误差不大,说明在此能量范围内选取是合适的。

在升华可以忽略的基础上,考虑到信噪比,应尽量用较高的激光能量密度,0.6 mJ/mm² 的结果在接受范围内,但是碳烟粒子已有部分升华,所以实际运用 AC-LII 技术推测碳烟粒径所用的激光能量密度选择在 0.55 mJ/mm² 左右。

3 结论

LII 测试中一个很重要的影响因素是激光能量,直接关系到测量结果的正确性和精确性。对于碳烟主小球粒径测试,由于为了避免破坏测试源以及升华模型目前存在不确定性,应该尽量避免升华的出现,故需要采用较低能量的激光,但是同时 LII 信号又直接受激光能量影响,能量过低会使信号不理想,信噪比过低,因此要综合考虑升华模型和信噪比来确定激光能量。

文中首先基于 LII 模型分析了激光能量密度对 LII 测试过程的影响,保证升华可忽略的情况下,为得到较好的信噪比,在激光波长为 532 nm 时得到理论的低能量密度阈值,在 0.5~0.6 mJ/mm² 之间。

然后实验得到不同能量密度下的 LII 信号,分析幅值发现,LII 信号先是随激光能量近似线性增加,之后由于发生升华,LII 信号缓慢增强,最后由于激光能量太大,粒子发生严重升华,LII 信号减弱。然后根据 LII 信号得到碳烟粒径随着激光能量的变化,发现在 0.5~0.6 mJ/mm² 范围内碳烟粒径结果较理想,与理论分析结果相吻合。与 TEM 采样分析得到的粒径结果对比,发现此范围内二者粒径结果基本相符,误差不大,说明激光能量在此范围内选取比较合适。所以最终根据理论分析和实验研究得出用于 AC-LII 推断碳烟粒径的低激光能量密度值在大气压火焰中和激光波长为 532 nm 时为 0.55 mJ/mm² 左右。

参考文献:

- [1] Smallwood G J, Snelling D R, Gülder L, et al. Transient particulate matter measurements from the exhaust of A direct injection spark ignition automobile [C]//SAE, 2001: 2001-01-3581.
- [2] Melton L A. Soot diagnostics based on laser heating [J]. Applied Optics, 1984, 23(13): 2201-2208.
- [3] Will S, Schraml S, Leipertz A. Two-dimensional soot-particle sizing by time-resolved laser induced incandescence [J]. Opt Lett, 1995, 20(22): 2342-2344.
- [4] Liu F, Stagg B J, Snelling D R, et al. Effects of primary soot particle size distribution on the temperature of soot particles heated by a nanosecond pulsed laser in an atmospheric laminar diffusion flame[J]. International Journal of Heat and Mass Transfer, 2006, 46: 777-788.
- [5] Wang Fei, Yan Jianhua, Ma Zengyi. Simulation on soot concentration measurement with laser induced incandescence [J]. Proceedings of the CSEE, 2006, 26(7): 6-11. (in Chinese)
- [6] He Xu, Ma Xiao, Wang Jianxin. Quantitative soot concentration measurement of flame by laser induced incandescence [J]. Journal of Combustion Science and Technology, 2009, 15(4): 344-349. (in Chinese)
- [7] Wang Yu, Yao Qiang, He Xu, et al. Electric field control of soot distribution in flames by laser induced incandescence [J]. Proceedings of the CSEE, 2008, 28(8): 34-39. (in Chinese)
- [8] He Xu, Li Hongmei, Zheng Liang, et al. Numerical simulation of the process of laser induced incandescence [J]. Transactions of Beijing Institute of Technology, 2012, 32(10): 1048-1053. (in Chinese)
- [9] Smallwood G J, Clavel D, Gareau D, et al. Concurrent quantitative laser-induced incandescence and SMPS measurements of EGR effects on particulate emissions from a TDI diesel engine[J]. SAE Paper, 2002: 2002-01-2715.
- [10] Snelling D R, Smallwood G J, Liu F. A calibration independent laser-induced incandescence technique for soot measurement by detecting absolute light intensity [J]. Applied Optics, 2005, 44(31): 6773-6785.