超快强场激光在高温燃烧场中的成丝现象及其应用

李贺龙, 徐淮良*

吉林大学电子科学与工程学院, 集成光电子学国家重点联合实验室, 长春 130012

* 联系人, E-mail: huailiang@jlu.edu.cn

2017-02-06 收稿, 2017-03-21 修回, 2017-03-22 接受, 2017-06-13 网络版发表

国家杰出青年科学基金(61625501)和国家自然科学基金(61427816, 61235003)资助

摘要 超快强场激光在大气等光学介质中传输时会受到克尔自聚焦效应和等离子体散焦效应的动态调制, 产生一种独特的非线性光学现象——激光成丝, 在大气传感、太赫兹光谱产生、天气控制等研究领域具有重要的应用前景. 针对超快强场激光在高温燃烧场成丝燃烧诊断应用, 介绍了超快强场激光在燃烧场中成丝动力学过程以及传输成丝特性, 综述了强场超快激光成丝诱导非线性光谱的机理及其在高温燃烧场诊断应用中的研究现状和进展, 并探讨了当前强场超快激光成丝在该领域所面临的挑战和应用前景.

关键词 飞秒激光成丝, 燃烧诊断, 非线性光谱, 等离子体通道

在能源环境领域, 煤炭、石油等化石能源在整个能源体系中仍占据着最重要的地位. 化石能源主要通过燃烧方式将化学能转化为电能、热能和机械能等供人们使用. 然而, 直接燃烧的转化方式能量转换效率低, 同时还不可避免地产生许多环境问题. 例如, 随着大量燃料被消耗, 空气中二氧化碳含量急剧增加导致全球变暖现象日益严重; 燃烧的副产物如氮氧化物、硫化物等在空气中进一步发生化学反应, 产生酸雨; 特别是最近研究显示, 因汽车等机动车的内燃机燃烧不完全所排出的废气和颗粒是大气污染的主要源头之一, 并与工业燃煤污染排放一起被列为近年来全国多地区频发雾霾天气的重要成因之一.

燃烧诊断是指通过各种技术手段测量燃料燃烧状态下燃烧场温度、燃烧中间产物组成及其浓度分布、燃烧速度、燃烧气体终产物与燃烧形成微粒种类等各种燃烧特性, 为理解燃烧反应的理化特性、动力学过程, 以及设计性能优异的燃烧器、优化控制燃烧过程提供实验参考数据. 因此, 燃烧诊断对优化燃烧系统设计、提高燃料燃烧效率和能量转化效率、减少

有毒有害污染物排放, 最终实现国家节能、减排目标具有十分重要的意义. 然而, 燃烧场中燃料燃烧过程存在高速、剧烈的气流运动和各组元间的强烈扩散运动, 发生超快复杂相变、产生上千种化学反应、形成上百种中间产物等物理化学过程, 以及燃烧处于高温、高压等极端复杂环境, 给燃烧精确诊断分析带来了诸多挑战.

至今, 人们已发展了多种燃烧诊断技术, 特别是基于激光的光谱分析技术, 例如激光诱导荧光光谱(LIF)技术、拉曼光谱、相干反斯托克斯拉曼光谱(CARS)技术、激光诱导击穿光谱(LIBS)技术等. 由于这些激光光谱技术具备实时、在线、高时空分辨能力、高灵敏度、对样品无干扰(或干扰小)等优点, 已在燃烧诊断中受到广泛应用^[1-4]. 然而, 针对复杂燃烧环境, 特别是高温、高压下的内燃机燃烧环境, 许多激光光谱技术并不适用, 如利用CARS技术测量具有拉曼活性的自由基中间产物时, 需要多光束相交并满足相位匹配条件, 操作复杂^[3]; 利用拉曼光谱产生的信号弱等. 目前在燃烧诊断方面应用较多的是LIF技

引用格式: 李贺龙, 徐淮良. 超快强场激光在高温燃烧场中的成丝现象及其应用. 科学通报, 2017, 62: 2876-2885

Li H L, Xu H L. Ultrafast strong laser filamentation and applications in high-temperature combustion field (in Chinese). Chin Sci Bull, 2017, 62: 2876-2885, doi: 10.1360/N972017-00135

术,已被广泛应用于测量燃烧过程中的液相、气相分子浓度的时空分布、火焰温度、燃烧过程中的中间产物如各种自由基、甲醛和燃烧最终产物NO等。例如,瑞典Lund大学利用该技术测量了发动机内CO的荧光二维分布^[5]。美国Sandia国家实验室^[6]利用双光子LIF测量了甲烷/空气湍流火焰的各组分浓度,研究了不同组分H₂、CO₂、N₂等对荧光淬灭效应的影响。然而,LIF的应用也存在一些限制:它是一种共振技术,需要激光与探测分子或原子能级共振,因此,只能用于单一组分探测,针对不同组分需要变换激发波长或更换激光器;LIF技术必须事先获知探测组分能级共振波长,因而无法探测火焰中未知组分。

近年来,超快激光技术的高速发展使人们更加容易地获得高功率的飞秒激光脉冲。1995年,美国密西根大学Braun等人^[7]发现高功率飞秒激光脉冲在空气中传播时会自发聚焦形成飞秒激光光丝,打破了人们关于超快强场激光由于衍射和色散效应的限制无法进行远距离传播的传统观念。强飞秒激光成丝过程中引发的诸多新奇非线性效应吸引了人们的广泛关注,如光丝中激光功率密度钳制、超连续白光、THz产生、自陡峭效应等^[8-10]。基于这些独特非线性效应,超快强场激光成丝在大气环境传感、空气激光、少周期脉冲产生、人工天气控制等应用研究领域展示了极大的应用前景^[11-16]。特别是在大气环境传感研究领域,发展了基于超快强场激光成丝两种完全不同的光谱技术手段:一种是以飞秒激光脉冲在成丝过程中经自相位调制效应产生的超连续白光作为光源,由于白光光源覆盖了紫外~红外波段,通过白光吸收光谱,实现环境中多种痕量分子进行同步探测^[14];另一种是利用飞秒光丝核区的高钳制强度诱导被探测组分激发、电离、解离,并发射特征“指纹”光谱,通过测量“指纹”光谱,实现多组分同时测量^[11,16]。

基于超快激光成丝诱导非线性光谱特点,人们期待超快激光成丝光谱技术可以用于燃烧诊断。一方面利用超快强场激光的超快特性测量燃烧场中具有超短寿命的燃烧中间自由基产物,并揭示燃烧场中存在的各种超快复杂物理化学过程;另一方面,利用飞秒光丝核区的高钳制强度特性多光子激发燃烧中间产物,实现多组分同时测量,解决LIF技术中的探测不同燃烧组分需要调谐激光波长的限制。

本文针对近年来新兴起的超快强场激光在高温

燃烧场成丝燃烧诊断应用研究,介绍了超快强场激光成丝现象和激光成丝诱导非线性光谱的机理,概述了超快强场激光成丝在燃烧场诊断应用中的研究现状和进展,最后,展望了强场超快激光成丝在燃烧诊断领域的应用前景。

1 超快强场激光成丝现象

经过二十多年的研究,强飞秒激光成丝的物理图像已经基本清晰,当前人们普遍接受的观点认为超快激光成丝是由光学克尔效应引起的激光光束自聚焦效应与自聚焦诱导弱电离产生的等离子体散焦效应间的动态平衡所产生的^[9,10]。具体而言,当强飞秒激光脉冲在光学介质内部传播时,高峰值功率会诱导介质的电子云分布重构,产生非线性极化效应,导致介质折射率发生变化。当具有高斯分布的激光脉冲在介质中传输时,激光的光斑中心强度较边缘高,介质折射率会更大。因此,传输介质相当于一个凸透镜,使得具有高峰值功率的强飞秒激光在传输过程中会克服衍射的限制产生克尔自聚焦效应。同时,当自聚焦焦点的激光功率密度足够大时,会通过多光子电离或隧穿电离等方式电离光学介质原子/分子产生等离子体,等离子体会引起折射率下降,产生凹透镜的效果,从而阻碍光束在空间上进一步聚焦;当散焦效应和自聚焦效应达到平衡后,激光光束会以一种无发散的形式传播下去,形成一条狭长的、高激光功率密度的等离子体区域,通常将其称之为飞秒激光光丝^[17,18]。当脉冲内部的能量因不断电离被耗散掉而不能继续维持这种动态平衡后,飞秒激光成丝现象被终止。

除了上述观点之外,最近研究也提出另一种成丝机制,认为介质中的高阶非线性会对克尔效应起到平衡作用,产生光丝^[19]。但这一机制目前仍存在较大争议,适用范围可能仅限于某些特定条件。

由于要克服衍射效应和色散效应的限制,只有当强飞秒激光脉冲的峰值功率超过某个数值后才能产生成丝现象,通常将这个数值称为成丝的阈值功率。人们已经测量了不同光学介质中的飞秒激光成丝阈值功率,例如,测量了脉宽为42 fs,中心波长为800 nm的激光脉冲在空气中成丝的阈值功率约为10 GW^[20];并发现随着激光脉宽的增加,飞秒激光成丝的阈值功率会逐渐减小。研究发现,这是因为在激光脉冲宽度较小时,原子核无法响应激光电场的快速

振荡变化;随着激光脉冲宽度的增加,原子核对非线性折射率的贡献也会逐步增加,导致飞秒激光成丝阈值功率的下降^[21].

光丝核区周围低强度的能量池是维持飞秒激光成丝现象的关键因素之一^[22,23].人们发现将光丝的核区挡住后,能量池会继续向核区“填充”能量,经过短暂传播后又会出现飞秒激光成丝现象^[22].但是利用带小孔的铝箔片将能量池挡住,导致无法继续向光丝核区“填充”能量,成丝现象会立即终止^[23].能量池的存在保证了飞秒激光在极端复杂环境(如雪、雾等条件)下仍可继续成丝^[24~26].

下面将根据上述超快强场激光成丝的一些特性着重介绍超快强场激光成丝诱导非线性光谱的原理及其具有的一些优势.

2 超快强场激光成丝诱导非线性光谱

飞秒激光成丝的一个重要特点是在成丝过程中,由于自聚焦效应和等离子体散焦的动态平衡使得光丝核区的激光强度基本保持不变,该激光强度被称为“钳制强度”^[17,18],可达 $10^{13} \sim 10^{14} \text{ W/cm}^2$.钳制强度与传输介质、激光参数、聚焦系统等存在一定的依赖关系.光丝中高强度激光与光丝传输通道内部的各种原子、分子相互作用,诱导其电离、解离、碰撞,产生处于激发态的各种原子、离子、基团,这些粒子通过自发弛豫或受激辐射向低能级跃迁,产生表明其身份的“指纹”光谱.通过对光丝诱导荧光光谱的峰位识别和峰值强度进行对比分析,可以定性定量地获得被探测组分的种类及浓度信息.通常将这种技术称为超快强场激光成丝诱导非线性光谱技术^[10,16].目前,基于飞秒激光成丝的非线性光谱技术在远程探测大气环境中温室气体、挥发性有机分子以及相似生物样品的识别等方面都展示了潜在的应用前景^[27~35].

作为一个示例,图1展示了本文利用焦距为0.5 m的聚焦镜直接在空气中聚焦激光波长800 nm、脉宽为40 fs、单脉冲能量为3 mJ的线偏振飞秒激光所产生的光丝与光丝诱导空气非线性荧光光谱.从图中可以观察到光丝诱导的空气荧光光谱是非常“干净”的,几乎观察不到等离子体连续谱.这是因为超强飞秒激光脉冲主要以多光子电离或隧穿电离方式电离空气分子生成自由电子.由于激光脉冲仅为40 fs,产生的电子没有足够时间在激光脉冲内与激光相互作用

图1 (网络版彩色)超快强场激光成丝诱导空气非线性光谱.插图为利用数码相机拍摄的光丝照片

Figure 1 (Color online) Ultrafast strong-field laser filamentation induced nonlinear spectrum in air. Inset: Photo of the filament taken by a digital camera

吸收第2个光子,从而不能产生雪崩电离过程^[17],因此由飞秒激光成丝过程获得的等离子温度(空气中大约为5800 K)^[36]相对于纳秒激光击穿光谱获得的等离子体温度要低很多.空气中等离子体密度测量结果显示自由传播形成的光丝等离子体密度大约为 $10^{14} \sim 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ ^[37].

因此,人们提出利用超快强场激光成丝诱导非线性光谱技术可以获得气体清晰指纹谱特性,将其应用于大气环境传感探测.图2是利用超快强场激光成丝诱导非线性光谱技术在大气中同时获取了甲烷和乙炔的指纹光谱的示例,根据甲烷分子和乙炔分子各自的光丝诱导非线性光谱特征,利用遗传算法对上述获得的光谱进行拟合,获得了两种气体分子的浓度信息^[38],展示了超快强场激光成丝诱导非线性光谱技术可以用来同时探测大气多组分污染物的应用前景.

事实上,目前存在许多与激光有关的大气遥感技术,但这些激光传感技术通常一次只能探测一种污染物,不能对多种污染物进行同时测量.例如,微分吸收激光雷达技术、红外吸收光谱等技术测量不同污染物通常均需要不同激光激发波长^[39,40].因此,超快强场激光成丝诱导非线性光谱传感技术的多组分同时探测特性使其成为传统大气传感激光光谱技术的有益补充,为实现实时、长程、多组分、高灵敏度的大气污染探测提供了新的解决方案.

基于上述实验展示,人们期待超快激光成丝光

图2 (网络版彩色)含有 5263 ppm 甲烷和 1316 ppm 乙炔的空气中的光丝诱导非线性光谱. 插图为 431 nm 附近“荧光”碎片 CH 的高分辨实验和拟合光谱, 计算得到甲烷和乙炔的浓度分别为 1592 和 6342 ppm^[38]

Figure 2 (Color online) Spectrum of the air including 5263 ppm of CH_4 and 1316 ppm of C_2H_2 by femtosecond filament excitation. The inset shows part of the experimental and fitting spectra of the “fluorescing” fragment CH at 431 nm. The calculated concentrations of acetylene and methane are 1592 and 6342 ppm, respectively^[38]

谱技术可以用于极端复杂环境的燃烧诊断. 下面将简要介绍超快强场激光在燃烧场中成丝特性以及成丝诱导火焰荧光机理.

3 超快强场激光燃烧场成丝特性研究

2013年, 人们首次观测到强飞秒激光在燃烧场中的成丝现象^[41]. 实验中, 选用了最简单酒精灯火焰作为目标火焰, 酒精灯火焰不仅构造简单、成本低廉, 而且还是一种非常典型的扩散型火焰, 与火箭发动机、工业燃烧炉等实际燃烧系统的火焰类型十分接近^[42]. 图3展示了测量的飞秒激光光丝与酒精灯火焰相互作用诱导的非线性光谱. 光丝到酒精灯灯芯的距离为 17 mm; 门延时设置为 -2 ns (激光到达与火焰相互作用区域的时刻标记为 0 ns); 门宽度设置为 200 ns. 光谱分析显示在这种条件下飞秒光丝在酒精灯火焰内部诱导的非线性光谱几乎不包含等离子体的连续谱. 如图3所示, 从光谱中可以清晰观测到来自于分子态的 C_2 , CH, CN, OH 和 NH, 以及原子态的 C 和 H 等多种燃烧中间产物的荧光发射谱线^[43]. 这些燃烧中间产物的确认展示了强飞秒激光光丝诱导非线性光谱技术应用于燃烧诊断的可行性.

3.1 超快强场激光在燃烧场中的传输特性

为进一步理解超快强场激光在燃烧场中的成丝

图3 (网络版彩色)飞秒光丝诱导酒精灯火焰的荧光光谱

Figure 3 (Color online) Filament-induced nonlinear spectrum of the ethanol-air flame on an alcohol burner

过程, 研究了超快强场激光在燃烧场中的传输特性. 如前所述, 阈值功率和光丝钳制强度是理解强飞秒激光成丝现象及光丝与光学介质非线性相互作用两个关键的物理参数^[20,44], 并且这两个参数与光学介质的种类密切相关, 例如在氦气中钛宝石飞秒激光器成丝的阈值功率大约为 268 GW^[45], 而同等条件下空气中成丝的阈值功率为 5~10 GW^[20]; 在氩气中光丝的钳制强度大约为空气的 3 倍^[46].

在燃烧场中飞秒激光成丝的阈值功率的测量中, 采用了测量激光焦点移动方法. 在方法中, 飞秒激光峰值功率越高, 对电子云重构的影响越大, 介质的非线性折射率的调制效应越明显, 因而自聚焦效应越强烈, 导致成丝的位置越提前. 而当激光峰值功率小于自聚焦阈值功率时, 激光焦点不变.

图4展示了3种激光能量下的氮分子荧光沿光丝轴向的分布特征. 实验中, 在与激光传播方向的侧向, 利用潜望镜系统与收集荧光透镜相结合的成像系统对光丝轴向荧光分布进行成像, 最终被带门控的 ICCD 探测^[47]. 为了使飞秒光丝全部被包含在燃烧场内, 实验中选择酒精灯阵列火焰作为研究对象, 火焰的横向长度大约为 50 mm, 且火焰中间无间隙. 测量中选择氮分子 337 nm 处荧光信号作为研究对象观测沿光丝轴向的荧光分布, 这是由于以下两个原因: (1) 图3中激光诱导的 C_2 , CH 和 OH 分子荧光也是常见的火焰中间产物, 它们在火焰内部受到热激发作用后会经过自发辐射产生荧光, 当激光能量较小而不能产生光丝时, 火焰中这些中间产物的自发辐射的荧光会强烈干扰入射激光诱导的荧光分辨, 影响测量准确度; (2) 中间产物 CN 与 NH 主要来自于在激光

图4 (网络版彩色) 60 (a), 215 (b)和420 μJ (c)能量激光诱导酒精灯火焰在 337 nm处的氮分子荧光沿光纤轴向分布特征和ICCD相机拍摄的荧光分布的照片. 箭头代表激光传播方向

Figure 4 (Color online) On-axis intensity distributions of nitrogen fluorescence at 337 nm in an ethanol-air flame and the images recorded by ICCD with three input energy. (a) 60 μJ ; (b) 215 μJ ; and (c) 420 μJ . The arrow: The laser propagation direction

诱导的等离子体协助效应^[48,49], 当激光能量较小时, CN与NH发射的荧光强度也非常弱, 因而也无法利用二者的荧光来确定阈值功率的数值.

从图4中可以看到, 激光焦点位置随入射激光能量变化而变化. 在激光脉冲能量较低时, 激光在火焰内进行线性传播, 荧光峰值位置不随激光脉冲能量的增加而变化; 当激光脉冲能量增加到一定数值后继续增加时, 激光在火焰内部传播方式为非线性传播, 荧光峰值位置随着激光脉冲能量的增加而发生明显移动. 结果展示通过拟合获得临界点处的激光脉冲能量为78 μJ , 对应的峰值功率为2.2 GW(实验中飞秒激光脉冲的脉宽为35 fs). 与空气中测量的阈值功率比较发现, 该数值明显小于同等条件下在空气内部飞秒激光成丝的阈值功率, 大约为其1/4.

另一方面, 激光光纤烧蚀金属箔片产生小孔, 通过测量小孔直径和透过小孔能量的方法计算了燃烧场内激光成丝的钳制强度. 在测量中, 利用焦距为

100 cm聚焦镜聚焦飞秒激光脉冲至火焰内部产生光纤, 同时, 在光纤传输路径中插入金属铜箔片. 高强度的光纤核心区会在铜箔表面打孔. 实验中, 选用上述参数的透镜聚焦激光脉冲是由于此聚焦条件与自由传播情形相比, 二者产生的光纤钳制强度的数值几近相同^[44]. 实验发现在铜箔片上的小孔面积随着激光脉冲数目增加而变大; 此外透射过小孔的激光能量也随着激光脉冲的数目增加. 但透射过小孔的激光能量先以较大斜率增加, 随后以较小的斜率增加. 斜率减小的原因是小孔的尺寸与光纤核心区的尺寸相当后, 光纤“行步”会进一步增大小孔的尺寸^[26]. 因此, 通过选择拐点位置处小孔的尺寸和透射的激光能量计算光纤的钳制强度. 结果发现火焰内部光纤的钳制强度大约为空气中的一半.

3.2 超快强场激光成丝诱导火焰荧光机理

火焰内部飞秒激光光纤核心区的钳制强度可以达到 10^{13} W/cm^2 , 燃料分子在如此高的激光强度下也会通过解离形成“荧光”碎片. 因此, 光纤诱导火焰的荧光既可能来自飞秒激光对火焰内部中间产物直接的激发作用, 也可能来自光纤对燃料分子在强场中的直接解离效应. 因此, 人们比较了纳秒激光击穿光谱和火焰自发发射光谱与超快强场成丝诱导火焰非线性光谱, 初步研究了光纤诱导火焰荧光的机理^[50].

如图5所示, 纳秒激光诱导酒精灯火焰击穿光谱主要以原子和离子谱线为主. 光谱显示多条分立的C, N, O, H等原子以及离子谱线叠加在等离子体连续谱上; 除此之外, 还包含很微弱CH和CN分子谱线.

图5 (网络版彩色)纳秒激光诱导酒精灯火焰内击穿光谱

Figure 5 (Color online) A typical laser-induced breakdown spectrum by the nanosecond laser excitation

这是因为强的激光脉冲被紧聚焦至火焰内部时,雪崩电离产生热的、稠密的等离子体,分子被分解.而在无激光激发状态下,酒精灯火焰的自发发射光谱特征是几种分子的光谱带叠加的低强度连续谱^[50].带状光谱是由于酒精在燃烧过程中火焰内中间产物在激发态向低能级跃迁发射荧光光谱.通过对火焰自发发射光谱分析,可以获得中间产物种类和浓度以及燃烧场温度分布信息.通过比较分析飞秒光丝诱导非线性光谱与上述两种光谱的差别,以及这些光谱随燃烧火焰高度的变化关系、时间延时关系等,人们揭示了超快强场激光在火焰中成丝诱导的火焰非线性光谱中的自由基CH, C₂, OH的荧光主要来自于光丝的多光子激发效应,而非来自于高强度的光丝对母体分子的解离效应.

4 超快强场激光成丝燃烧诊断研究现状和进展

如前所述,燃料在燃烧过程形成一个非常复杂的环境,产生大量中间产物并伴随着许多化学反应发生.虽然人们已经在火焰中测量了超快强场激光传输成丝参数,并展示了超快强场激光成丝诱导非线性光谱技术可以用于简单火焰燃烧诊断,但相关研究仍处于起步阶段.当前关于利用超快强场激光成丝对燃烧场进行诊断分析的一些主要进展可以归纳如下.

(1) 验证了超快强场激光成丝非线性光谱技术用于不同燃料燃烧诊断的普适性.火焰燃烧场燃烧特性与所用燃料息息相关,人们发现燃料不同,火焰燃烧特性也会不同.通过测量5种不同醇类燃料火焰中获得的光丝诱导的非线性光谱^[51],人们发现虽然不同燃料燃烧形成的燃烧场是明显不同的,但光丝诱导火焰发光光谱特征是类似的,光谱主要仍由中间产物C₂, CH, CN和C等组成.通过对比不同火焰中获得的中间产物C₂, CH, CN和C的荧光强度以及它们之间的强度比,发现随着碳链分子的逐步变大,不同中间产物荧光强度均明显增强,利用不同中间产物荧光强度比值可区分不同燃料燃烧场.

(2) 提出了利用超快强场激光成丝诱导激射现象解决燃烧场内的荧光淬灭问题.在高温高压火焰燃烧环境中,由于中间产物分子运动速率快、平均自由程短、碰撞几率大,容易导致荧光淬灭现象^[2].因而,解决燃烧场内的荧光淬灭问题一直是燃烧分析

领域的热点.在超快强场激光成丝研究中,人们发现光丝可以诱导氮分子产生粒子数反转,产生荧光自发辐射放大或种子注入放大,可以有效提高光丝诱导荧光信号的信噪比^[12,52].近来,人们也在燃烧场中展示了这种激射现象.如图6所示,通过后向测量不同激光能量下酒精灯乙醇/空气火焰中间产物CN分子在388 nm(B²Σ→X²Σ)光谱线和与C₂分子在474 nm(A³Π_g→X³Π_u)光谱线强度^[53],发现燃烧中间产物CN分子荧光强度随着激光脉冲能量的增加而呈指数增加;但中间产物C₂分子荧光强度随着激光脉冲能量的增加呈线性增加.结果表明,光丝在火焰内部激励中间产物CN分子形成粒子数反转,产生荧光自发辐射放大.该激射现象可用于克服燃烧场内,特别是高温高压环境下的荧光淬灭问题,提高荧光信号的信噪比.

(3) 展示了利用飞秒光丝诱导火焰非线性光谱技术实现超快燃烧诊断可行性.燃烧过程是瞬态的,在同一位置不同时间会产生不同的具有超短寿命中间产物并伴随着许多不同超快化学反应.因此,要求超快瞬态测量,在单冲程内尽可能多地获得各种物理量随时间变化的信息,这就需要利用单脉冲获取数据,并要求激光系统具备高重复频率.传统用于燃烧诊断的激光光谱技术通常以纳秒激光作为泵浦激光系统,但商用高能纳秒激光系统的重复频率通常在百赫兹以下,因此,需要通过各种手段提高探测时间频率.近年来,超快超强激光技术已获得长足发展,已经很容易获得高重复频率(1~10 kHz)、高峰值功率飞秒激光脉冲.图7展示了单个飞秒激光脉冲在酒精灯火焰内部成丝激发中间产物发射的荧光光谱,表明该项技术可利用单脉冲获取燃烧中间产物信息.通过结合高重复频率飞秒激光脉冲,可实时获得燃烧场信息.

5 总结与展望

在本文中,介绍了强飞秒激光在光学透明介质中的成丝现象以及利用光丝核区超强激光强度特性非线性诱导原子/分子发射“指纹”光谱技术,展示了该技术应用于燃烧诊断的可行性,综述了该技术在燃烧诊断领域的研究进展.由于飞秒光丝可同步探测多种燃烧中间产物,并在燃烧场内可诱导荧光自发辐射放大的激射行为,因此飞秒光丝诱导非线性荧光光谱技术被认为在燃烧分析,尤其是针对高温

图6 (网络版彩色)中间产物CN (a)和C₂ (b)分别在 388 和 474 nm附件荧光强度随激光脉冲能量增加的变化趋势; 插图为CN和C₂的荧光强度对应的光谱积分区域; (c) 不同激光能量激光脉冲在火焰内成丝时光丝的长度; (d) 3种激光能量下飞秒激光在火焰内成丝照片, 酒精灯阵列火焰长度大约为 40 mm^[53]

Figure 6 (Color online) Dependence of the emission intensity of CN (a) at 388 nm and that of C₂ at 474 nm (b) on the input laser energy. Insets in (a) and (b) show the integrated range of spectrum for obtaining the signal intensities of CN and C₂, respectively. (c) The filament lengths in the flame versus the input laser energy; (d) the photos of the flame together with the filament taken for three incident laser energies, and the length of the alcohol burner array is about 40 mm^[53]

图7 (网络版彩色)单脉冲飞秒激光诱导酒精灯火焰非线性光谱
Figure 7 (Color online) Single-shot femtosecond filament-induced nonlinear spectrum in the ethanol-air flame

高压燃烧环境, 具备独特的优势. 但从目前研究现状来看, 该技术在燃烧诊断应用方面仍然存在一些挑

战: 一是该技术目前工作范围主要还是在米量级的近场实验展示阶段, 在远场应用仍需要进一步研究超快强场激光在火焰中的传输和控制问题; 二是需要进一步研究超快强场激光成丝在不同燃料、不同压力等燃烧条件下诱导火焰指纹光谱的机理; 三是光谱定标问题. 总之, 随着飞秒激光技术的发展, 以及人们对超快强场激光在各种介质中相互作用的更深入的了解, 我们期待不久的将来超快强场激光成丝非线性光谱技术将在高温燃烧场诊断领域获得应用. 同时, 超快强场激光成丝在燃烧场中诱导非线性光谱技术研究也为激光强场与原子、分子的相互作用研究提供了一个新的平台, 使人们更加深入地理解飞秒激光成丝背后的物理图像, 从而更好地将其应用到新的研究领域.

参考文献

- 1 Eckbreth A C. Laser Diagnostics for Combustion Temperature and Species. Boca Raton: CRC Press, 1996
- 2 Hans U, Stauffer W D K, Gord J R, et al. Laser-induced fluorescence detection of hydroxyl (OH) radical by femtosecond excitation. Opt Lett, 2011, 36: 1776–1778
- 3 Kiefer J E P. Laser diagnostics and minor species detection in combustion using resonant four-wave mixing. Prog Energy Combust Sci,

- 2011, 37: 525–564
- 4 Kotzagianni M, Couris S. Femtosecond laser induced breakdown for combustion diagnostics. *App Phys Lett*, 2012, 100: 264104
- 5 Richter M, Li Z, Aldén M. Application of two-photon laser-induced fluorescence for single-shot visualization of carbon monoxide in a spark ignited engine. *Appl Spectrosc*, 2007, 61: 1–5
- 6 Hsu A, Narayanaswamy V, Clemens N, et al. Mixture fraction imaging in turbulent non-premixed flames with two-photon LIF of krypton. *P Combust Inst*, 2011, 33: 759–766
- 7 Braun A, Korn G, Liu X, et al. Self-channeling of high-peak-power femtosecond laser pulses in air. *Opt Lett*, 1995, 20: 73–75
- 8 Liu W. Intensity clamping during femtosecond laser filamentation. *Chin J Phys*, 2014, 52: 465–488
- 9 Couairon A, Mysyrowicz A. Femtosecond filamentation in transparent media. *Phys Rep*, 2007, 441: 47–189
- 10 Chin S L, Hosseini S A, Liu W, et al. The propagation of powerful femtosecond laser pulses in optical media: Physics, applications, and new challenges. *Can J Phys*, 2005, 83: 863–905
- 11 Xu H, Cheng Y, Chin S L, et al. Femtosecond laser ionization and fragmentation of molecules for environmental sensing. *Laser Photonics Rev*, 2015, 9: 275–293
- 12 Yao J, Zeng B, Xu H, et al. High-brightness switchable multiwavelength remote laser in air. *Phys Rev A*, 2011, 84: 051802
- 13 Rohwetter P, Kasparian J, Stelmaszczyk K, et al. Laser-induced water condensation in air. *Nat Photonics*, 2010, 4: 451–456
- 14 Kasparian J, Rodríguez M, Méjean G, et al. White-light filaments for atmospheric analysis. *Science*, 2003, 301: 61–64
- 15 Guandalini A, Eckle P, Anscombe M, et al. 5.1 fs pulses generated by filamentation and carrier envelope phase stability analysis. *J Opt Soc Am B*, 2006, 39: 257
- 16 Chin S L, Xu H L, Luo Q, et al. Filamentation “remote” sensing of chemical and biological agents/pollutants using only one femtosecond laser source. *App Phys B*, 2009, 95: 1–12
- 17 Chin S L. *Femtosecond Laser Filamentation*. Berlin: Springer, 2010
- 18 Chin S L, Wang T J, Marceau C, et al. Advances in intense femtosecond laser filamentation in air. *Laser Phys*, 2012, 22: 1–53
- 19 Ni J, Yao J, Zeng B, et al. Comparative investigation of third- and fifth-harmonic generation in atomic and molecular gases driven by midinfrared ultrafast laser pulses. *Phys Rev A*, 2011, 84: 063846
- 20 Liu W, Chin S. Direct measurement of the critical power of femtosecond Ti: Sapphire laser pulse in air. *Opt Express*, 2005, 13: 5750–5755
- 21 Nibbering E T J, Grillon G, Franco M A, et al. Determination of the inertial contribution to the nonlinear refractive index of air, N₂, and O₂ by use of unfocused high-intensity femtosecond laser pulses. *J Opt Soc Am B*, 1997, 14: 650–660
- 22 Liu W, Gravel J F, Thérberge F, et al. Background reservoir: Its crucial role for long-distance propagation of femtosecond laser pulses in air. *App Phys B*, 2005, 80: 857–860
- 23 Liu W, Thérberge F, Arévalo E, et al. Experiment and simulations on the energy reservoir effect in femtosecond light filaments. *Opt Lett*, 2005, 30: 2602–2604
- 24 Méjean G, Kasparian J, Yu J, et al. Multifilamentation transmission through fog. *Phys Rev E*, 2005, 72: 026611
- 25 Xu H L, Simard P T, Kamali Y, et al. Filament-induced breakdown remote spectroscopy in a polar environment. *Laser Phys*, 2012, 22: 1767–1770
- 26 Chin S L, Talebpour A, Yang J, et al. Filamentation of femtosecond laser pulses in turbulent air. *App Phys B*, 2002, 74: 67–76
- 27 Gravel J F, Luo Q, Boudreau D, et al. Sensing of halocarbons using femtosecond laser-induced fluorescence. *Anal Chem*, 2004, 76: 4799–4805
- 28 Xu H L, Daigle J F, Luo Q, et al. Femtosecond laser-induced nonlinear spectroscopy for remote sensing of methane. *App Phys B*, 2006, 82: 655–658
- 29 Wei X Y, Tu Z W, Liu C, et al. Differentiation of positional isomers of propyl alcohols using filament-induced fluorescence. *Chin Phys Lett*, 2016, 33: 054201
- 30 Luo Q, Xu H L, Hosseini S A, et al. Remote sensing of pollutants using femtosecond laser pulse fluorescence spectroscopy. *App Phys B*, 2006, 82: 105–109
- 31 Xu H L, Méjean G, Liu W, et al. Remote detection of similar biological materials using femtosecond filament-induced breakdown spectroscopy. *App Phys B*, 2007, 87: 151–156
- 32 Wang T J, Xu H, Daigle J F, et al. Water vapor concentration measurement in air using filament-induced fluorescence spectroscopy. *Opt Lett*, 2012, 37: 1706–1708
- 33 Stelmaszczyk K, Rohwetter P, Méjean G, et al. Long-distance remote laser-induced breakdown spectroscopy using filamentation in air. *App Phys Lett*, 2004, 85: 3977–3979
- 34 Xu H L, Chin S L. Femtosecond laser filamentation for atmospheric sensing. *Sensors*, 2010, 11: 32–53

- 35 Xu H L, Azarm A, Bernhardt J, et al. The mechanism of nitrogen fluorescence inside a femtosecond laser filament in air. *Chem Phys*, 2009, 360: 171–175
- 36 Bernhardt J, Liu W, Théberge F, et al. Spectroscopic analysis of femtosecond laser plasma filament in air. *Opt Commun*, 2008, 281: 1268–1274
- 37 Théberge F, Liu W, Simard P T, et al. Plasma density inside a femtosecond laser filament in air: Strong dependence on external focusing. *Phys Rev E*, 2006, 74: 036406
- 38 Xu H L, Kamali Y, Marceau C, et al. Simultaneous detection and identification of multigas pollutants using filament-induced nonlinear spectroscopy. *App Phys Lett*, 2007, 90: 101106
- 39 Svanberg S. Differential absorption Lidar (DIAL). In: *Air Monitoring by Spectroscopic Techniques*. New York: Wiley, 1994. 85–162
- 40 Measures R M. *Laser Remote Sensing: Fundamentals and Applications*. New York: Wiley, 1984
- 41 Li H L, Xu H L, Yang B S, et al. Sensing combustion intermediates by femtosecond filament excitation. *Opt Lett*, 2013, 38: 1250–1252
- 42 Mahesh S, Mishra D P. Flame structure of LPG-air inverse diffusion flame in a backstep burner. *Fuel*, 2010, 89: 2145–2148
- 43 Pearse R W B, Gaydon A G, Pearse R W B, et al. *The Identification of Molecular Spectra*. London: Chapman and Hall, 1976
- 44 Mitryukovskiy S I, Liu Y, Houard A, et al. Re-evaluation of the peak intensity inside a femtosecond laser filament in air. *J Phys B*, 2015, 48: 094003
- 45 Bernhardt J, Simard P T, Liu W, et al. Critical power for self-focusing of a femtosecond laser pulse in helium. *Opt Commun*, 2008, 281: 2248–2251
- 46 Xu S, Bernhardt J, Sharifi M, et al. Intensity clamping during laser filamentation by two level femtosecond laser in air and argon. *Laser Phys*, 2011, 22: 195–202
- 47 Li H, Chu W, Zang H, et al. Critical power and clamping intensity inside a filament in a flame. *Opt Express*, 2016, 24: 3424–3431
- 48 Baudalet M, Guyon L, Yu J, et al. Spectral signature of native CN bonds for bacterium detection and identification using femtosecond laser-induced breakdown spectroscopy. *App Phys Lett*, 2006, 88: 063901
- 49 Yuan S, Wang T, Lu P, et al. Humidity measurement in air using filament-induced nitrogen monohydride fluorescence spectroscopy. *App Phys Lett*, 2014, 104: 091113
- 50 Li H L, Wei X Y, Xu H L, et al. Femtosecond laser filamentation for sensing combustion intermediates: A comparative study. *Sensor Actuat B-Chem*, 2014, 203: 887–890
- 51 Li H, Chu W, Xu H, et al. Simultaneous identification of multi-combustion-intermediates of alkanol-air flames by femtosecond filament excitation for combustion sensing. *Sci Rep*, 2016, 6: 27340
- 52 Hosseini S, Azarm A, Daigle J F, et al. Filament-induced amplified spontaneous emission in air–hydrocarbons gas mixture. *Opt Commun*, 2014, 316: 61–66
- 53 Chu W, Li H, Ni J, et al. Lasing action induced by femtosecond laser filamentation in ethanol flame for combustion diagnosis. *App Phys Lett*, 2014, 104: 091106

Summary for “超快强场激光在高温燃烧场中的成丝现象及其应用”

Ultrafast strong laser filamentation and applications in high-temperature combustion field

LI HeLong & XU HuaiLiang*

State Key Laboratory on Integrated Optoelectronics, College of Electronic Science and Engineering, Jilin University, Changchun 130012, China

* Corresponding author, E-mail: huailiang@jlu.edu.cn

The propagation of ultrafast strong laser in optical media such as ambient air can induce a dynamical balance between Kerr self-focusing and defocusing of plasma, resulting in a unique nonlinear phenomenon—laser filamentation, which have shown promising applications in areas such as atmospheric sensing, THz generation, and weather control. In this article, we present an overview of ultrafast strong laser filamentation in combustion fields and its potential application in combustion diagnostics, which is of particular significance in rationalizing the physical and chemical nature of combustion systems such as auto engines for efficient combustion of fuels with low-pollution products. We first introduce the dynamical processes and propagation properties of ultrafast strong laser filamentation in combustion fields, in which the determination of the two fundamental physical parameters, critical power and clamping intensity, for femtosecond laser filamentation in combustion flames is presented. Although these values in combustion flames are found to be smaller than in air, the intensity clamped in flame filaments are enough to induce multiple photon excitation and ionization of combustion intermediates such as CN, C₂ and CH free radicals, and atomic C and H to fluoresce. The fluorescence signals are sensitive to the position of interaction of the filament with the flame that indeed reflects the concentration distributions of the species to be sensed. We then present the underlying mechanisms of ultrafast strong laser filamentation induced nonlinear spectroscopy, in which the femtosecond filament-induced flame fluorescence emissions are found to mainly originate from the interaction of femtosecond laser pulses with the combustion intermediates existing in the combustion environment, but not from the fragmentation of parent fuel molecules. In particular, due to the high nonlinear properties of femtosecond laser filamentation in combustion flames, filament-induced nonlinear flame fluorescence technique could be applied for simultaneous identification of multiple combustion intermediates in different fuel flames by comparing the signal ratios between the intermediates, providing the possibility of this technique in application to various combustion conditions that strongly depend on the fuel species. Interestingly, with the femtosecond laser filament excitation, it is demonstrated that in flames, some combustion species can be populated inverted, generating lasing actions by observing the backward fluorescence signals as a function of filament length, which provides a way to overcome the quenching of specific species in combustion diagnostics, and thus to improve signal to noise ratio in the combustion monitoring. It is also demonstrated that filament-induced fluorescence of flames can provide real-time monitoring of combustion intermediates by using a single shot femtosecond laser pulse, which is very important in combustion diagnostics because of the turbulent nature of combustion flames. We finally give an overview of the current research status and progress of ultrafast laser filamentation in application to the diagnostics of high-temperature combustion fields, and discussed both current challenges and a future perspective. Since high-power femtosecond laser system with high repetition rate of up to 10 kHz is available, the abovementioned results using femtosecond laser filamentation in flames reveal the possibility for high-speed monitoring of multiple combustion intermediates by means of femtosecond laser filament excitation.

femtosecond laser filamentation, combustion diagnostics, nonlinear spectroscopy, plasma channel

doi: 10.1360/N972017-00135