

doi: 10.11823/j.issn.1674-5795.2022.05.02

基于激光诊断的分子标记示踪测速技术研究进展

李晓峰, 武腾飞*

(航空工业北京长城计量测试技术研究所, 北京 100095)

摘 要: 随着飞行器速度的不断提升, 高超声速气流流动理论、高超声速燃烧流场分析、飞行器空气动力学特性等研究的重要性日益凸显。目前常规的速度测量方法在面对高超声速复杂流场环境时受到的限制越来越明显, 需要研究新的技术以满足流场内精确速度测量需求。分子标记示踪测速技术因其非侵入、无跟随性限制等优势正在成为研究热点。本文阐述了纳秒激光分子标记示踪测速技术、飞秒激光分子标记示踪测速技术的基本原理、主要参数和工作特点, 分析了这些技术在测量中所面临的挑战, 并对其在科学及工程领域中的应用前景展开了讨论, 为推动高超声速复杂流场环境速度测量技术发展提供借鉴。

关键词: 飞秒激光; 纳秒激光; 分子标记示踪测速; 超声速流场

中图分类号: TB9; O4

文献标识码: A

文章编号: 1674-5795(2022)05-0013-10

The progress of molecular tagging velocimetry technology based on laser diagnosis

LI Xiaofeng, WU Tengfei*

(Changcheng Institute of Metrology & Measurement, Beijing 100095, China)

Abstract: As the aircraft's speed increases, the research on hypersonic aerodynamics, hypersonic combustion flow field, and aircraft aerodynamic characteristics has become more and more important. The conventional velocity measurement methods are increasingly limited in the complex hypersonic flow field, and new measurement techniques need to be investigated to meet the demand for the accurate measurements of the flow. Therefore, the molecular tagging velocimetry is becoming a hot research topic because of its advantages of non-intrusiveness and no limitation of following behaviors. This paper describes the basic principles, main parameters, and operating characteristics of nanosecond laser molecular tagging velocimetry and femtosecond laser molecular tagging velocimetry, analyzes the challenges faced by these techniques in measurement and discusses the prospects of their application in science and engineering fields. This paper provides a reference for the development of velocity measurement techniques in the hypersonic complex flow field.

Key words: femtosecond laser; nanosecond laser; molecular tagging velocimetry; hypersonic flow field

0 引言

高超声速飞行器因其速度快、作战半径大、反应时间短、隐蔽性好等特点已成为世界航空航

天领域极其重要的发展方向, 并被广泛关注。然而随着飞行器速度的提升, 其动力特性的获取也变得越来越困难。计算流体力学虽然能够实现对于部分流场流动的预测, 但无法实现对流场转捩、

收稿日期: 2022-10-15; 修回日期: 2022-10-21

基金项目: 航空工业计量所创新基金(ZC02201580)

引用格式: 李晓峰, 武腾飞. 基于激光诊断的分子标记示踪测速技术研究进展 [J]. 计测技术, 2022, 42 (5): 13-22.

Citation: LI X F, WU T F. The progress of molecular tagging velocimetry technology based on laser diagnosis [J]. Metrology and measurement technology, 2022, 42 (5): 13-22.



湍流以及超音速燃烧等复杂极端工况的准确预测。因此目前仍然需要利用地面风洞试验进行飞行器动力特性的获取及验证。风洞技术发展迅速,已经可以实现大部分极端环境的复现,但是在高超声速流场中,受激波、湍流等因素的影响,获取风洞内流动参数的传统测量方法难以得到准确测量结果,因此亟需展开相关技术研究。

目前常见的速度测量方法可分为两类:一类为侵入式测量方法,例如使用热线风速仪、皮托管等装置直接接触流场进行测量,这类方法相对成熟,且已经商业化,成本低廉,但由于侵入式测量会引入激波干扰,且高超声速流场内部环境恶劣,极易损害侵入的部件,因此过去成熟的侵入式测量方法,在高超声速测量领域并不适用;另一类则是基于激光诊断技术的非接触测量方法,该类方法无需侵入流场,可适用于各类高速流场的测量,是目前高超声速流场内速度测量采用的主要方式。

应用于流场速度测量的光学诊断技术按原理可分为两类:基于多普勒效应获取速度信息的测速技术和基于示踪剂位移获取速度信息的测速技术。

基于多普勒原理测速的方法被称为激光多普勒测速(Laser Doppler Velocimetry, LDV)技术^[1]。其原理可分为两大类:①在流场内散播示踪粒子,通过示踪粒子的散射光所包含的多普勒频移信息获取速度信息,但此类方法受限于散播示踪粒子的跟随性以及恶劣环境中的稳定性,若应用于高超声速流场中,将面临较大挑战;②利用气体分子的光谱信息,结合可调谐半导体激光吸收光谱(Tunable Diode Laser Absorption Spectroscopy, TDLAS)^[2]技术和激光诱导荧光(Laser Induced Fluorescence, LIF)^[3-4]技术来进行速度测量。此类方法虽然解决了跟随性的限制,但是受限于测量原理,求解具备空间分辨的结果相对困难。

基于示踪剂位移获取速度信息的测速技术可以根据示踪剂的类型分为以大尺寸颗粒(一般为微米量级)作为示踪剂的测速技术和以气体分子作为示踪剂的分子标记示踪测速技术。

以大尺寸颗粒作为示踪剂的测速技术中,最具代表性的是粒子图像测速法(Particle Image Ve-

locimetry, PIV)^[5-6],它是目前流场速度测量的主流技术之一,技术成熟度高,在低速流场中有较好的测速精度,且天然具备空间分辨。但考虑到PIV要面对粒子的散光性、跟随性、污染性、稳定性等问题,其高超声速流场中的应用局限性开始逐渐凸显。而且有研究表明流场中的示踪粒子在遭遇激波时,会被快速加速而脱离流场^[7],因此若实际应用于高超声速流场中,PIV将会面对很大的挑战。

分子标记示踪测速技术由激光诱导荧光技术衍生而来,发展时间并不晚于以大尺寸颗粒作为示踪剂的测速技术,由于信号强度、成本等问题,其技术成熟度、商业化发展程度相对较弱。但是随着被测流场速度上限的不断提升,以PIV技术为代表的用大尺寸颗粒作为示踪剂的测速技术的局限性开始凸显,而分子标记示踪测速技术空间分辨、不受粒子跟随性限制的优势则日益瞩目。近几年飞秒激光技术的发展为分子标记示踪测速技术开拓出了全新的技术路线,可以说目前分子标记示踪测速技术是高超声速流场等极端流场环境中发展潜力最大的测速技术。

因此,本文将围绕分子标记示踪测速技术的分类、工作原理、优缺点和实际应用中所面临的挑战进行论述。

1 分子标记示踪测速技术

分子标记示踪测速技术本质上是利用分子荧光标记气体流动过程的测速技术。通过分子标记在确定时间内移动的位移信息,推导出速度信息,原理如图1所示,其中, t_0 为标记时刻, Δt 为测量时刻与标记时刻间的时间间隔, ΔS 为 Δt 时间段内的位移, ΔS 与 Δt 的比值即为速度。

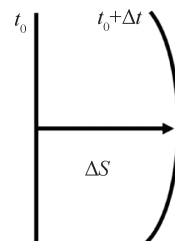


图1 分子标记示踪测速原理示意图

Fig.1 Schematic diagram of molecular tagging velocimetry

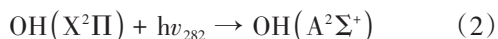
根据标记诱导激发分子荧光这一核心过程进行区分, 分子标记示踪测速技术可以分为围绕纳秒激光进行的“写入-读取”的两段式分子标记测速技术和基于飞秒激光激发产生的能够自我维持发光无需读取过程的分子标记示踪测速技术。

2 纳秒激光分子标记示踪测速技术

纳秒激光分子标记示踪测速技术是起步最早, 技术路线最多的分子标记示踪测速技术。其多样性源自于同步发展的激光诱导荧光技术, 几乎所有的纳秒激光分子标记示踪测速技术的读取过程都是对应示踪分子的激光诱导荧光过程。而写入过程是通过光解、振转能级变化等能够产生长时间存在的示踪分子的过程。目前主要的分子标记示踪技术的标记物包括: OH, O₂, O₃, NO, Kr 等, 每一种物质对应一到两条技术路线。

2.1 羟基标记示踪测速技术

美国范德保大学的 Robert, Wehrmeyer 等人于 20 世纪 90 年代提出了羟基标记示踪测速 (Hydroxyl Tagging Velocimetry, HTV) 技术^[8]。该技术利用紫外激光光解水产生羟基作为写入过程, 以羟基的激光诱导荧光过程作为读取过程。HTV 的激发读取过程如图 2 所示, 速度测量实验装置如图 3 所示。反应方程式为



式中: $\text{H}_2\text{O}(\text{X}^1\text{A}_1)$ 为处于基态的水分子; $\text{OH}(\text{X}^2\Pi)$ 为处于基态的羟基基团; $h\nu_{193}$ 为 193 nm 深紫外激光的光子 (h 为普朗克常数, ν 为电场振荡频率); $\text{H}(\text{S})$ 为光解产生的氢原子; $h\nu_{282}$ 为 282 nm 的紫外激光光子; $\text{OH}(\text{A}^2\Sigma^+)$ 为激发态的羟基基团。

常见的激发过程采用 193 nm ArF 紫外激光器通过单光子光解过程将水蒸气分解为氢原子和羟基。生成的羟基在 288 nm 紫外激光的激发下发出荧光, 过程如图 2 所示, 其中, $\text{A}^2\Sigma^+$, $\text{X}^2\Pi$ 均代表羟基的电子能级, ν' , ν'' 均代表振动能级。羟基示踪剂的寿命可达十几微秒, 为其在超声速流测量中应用创造了可能性。且羟基的光子吸收截面随着温度的升高而增大, 导致更多的分子达到振动态, 荧光强度更强, 使其更适用于高温流场^[9]。作为以水分子为前驱物, 以羟基为分子标记物的

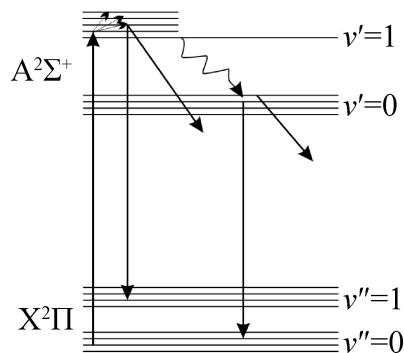


图2 HTV的激发读取过程^[8]

Fig.2 HTV excitation-read process^[8]

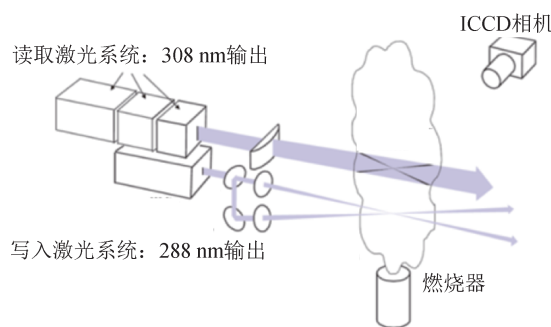


图3 HTV速度测量实验装置图^[9]

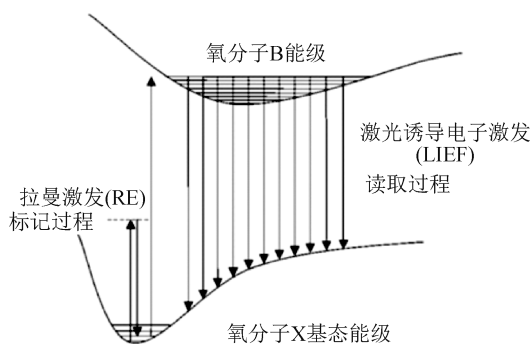
Fig.3 Experimental setup of HTV speed measurement^[9]

测速技术, HTV 适用于流场中天然存在水的情况, 目前已成功应用于燃烧流场中, 但示踪分子 OH 的浓度受流场中 O 原子浓度的影响, 因此在富燃火焰中的测速效果有待提高^[10]。总体来说该技术在燃烧场^[9, 11]、超声速流场^[12]中都有良好的应用前景。

2.2 拉曼激发激光诱导电子荧光测速技术

由美国普林斯顿大学 Miles 等人提出拉曼激发激光诱导电子荧光测速 (Raman Excitation+Laser-Induced Electron Fluorescence, RELIEF)^[13-14], 其本质是利用拉曼激发过程实现氧气分子的振动能级变化, 产生位于一个长寿命振动激发态的氧气分子作为示踪分子, 随后对处于该能态的氧分子共振激发来完成测速中的读写过程。RELIEF 的原理如图 4 所示。

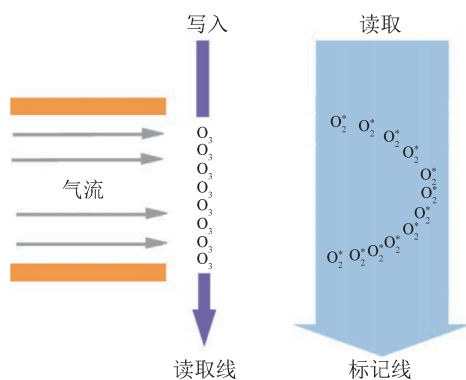
由于氧是一种双原子分子, 没有偶极矩, 因此氧的振动寿命非常长 (1 atm 下约为 27 ms), 这是 RELIEF 能够应用于测速的核心。但这也意味着无法用单光子共振激发过程完成写入, 需要一个称为受激拉曼散射的双光子过程对氧分子进行振

图4 RELIEF原理图^[16]Fig.4 Schematic diagram of RELIEF^[16]

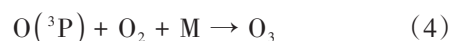
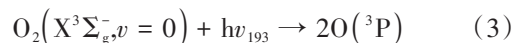
动激发。RELIEF常用的“写入”激光包括532 nm激光和580 nm激光。读取过程则由193 nm ArF准分子激光器完成，经过振动激发的氧分子被193 nm的光子进一步激发至舒曼-朗格带，随后自发辐射放出荧光，被ICCD相机等信号采集装置接收，完成测量过程。水等三原子分子的存在会显著缩短振动能级的寿命，因此在大气温度和气压下，“写”和“读”之间的延迟时间被缩短到10 μs量级。目前，RELIEF已应用于超声速和亚声速流动的瞬时速度和湍流统计研究^[15-16]，但由于信号强度等因素的限制，RELIEF在高超声速流动条件下的应用有待进一步研究。

2.3 臭氧标记示踪测速技术

美国范德堡大学的Robert, Wehrmeyer等人提出臭氧标记示踪测速（Ozone Tagging Velocimetry, OTV）技术^[17-19]，该技术利用紫外光诱导的光化学反应产生臭氧作为写入过程，再将臭氧光解激发产生氧气荧光作为读取过程。利用OTV进行速度测量的示意图如图5所示。

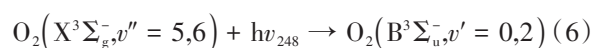
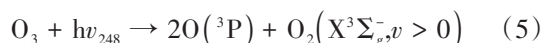
图5 OTV速度测量示意图^[17]Fig.5 Schematic diagram of OTV speed measurement^[17]

氧分子在193 nm ArF激光器的辐照下发生解离，经三体反应产生臭氧，具体反应概括为^[20]



式中： $\text{O}_2(\text{X}^3\Sigma_g^-, v=0)$ 为处于基态的氧分子； $\text{O}({}^3\text{P})$ 为作为光解产物的氧原子； O_2 为空气中的氧分子； O_3 为臭氧分子。

OTV的第二步是读取标记的臭氧位置。利用248 nm KF激光光解离臭氧示踪剂，激发经过光化学反应已处于振动激发能态的氧气分子，释放荧光完成读取过程。具体过程可以总结为



式中： $\text{O}_2(\text{X}^3\Sigma_g^-, v>0)$ 为振动能级变化的氧分子； $\text{O}_2(\text{B}^3\Sigma_u^-, v'=0,2)$ 为处于激发态的氧分子。

由于臭氧标记物具有相对的化学惰性，因此OTV技术在干燥或潮湿的环境内均有良好的适应性，尤其适用于低温气流的测量。但面对高温气流时， O_3 的稳定性开始降低，进而影响标记的稳定性，降低了测量精度。臭氧作为示踪剂的寿命很长，适用于流场内的标记示踪测速过程，但它们的形成也需要很长时间，这限制了臭氧标记示踪测速技术的应用^[19]。

2.4 振动激发一氧化氮示踪测速技术

美国德克萨斯A&M大学的Rodrigo等人提出振动激发一氧化氮示踪测速（Vibrationally Excited Nitric Oxide Monitoring, VENOM）技术^[21]，利用NO作为示踪剂，以 NO_2 作为前驱物，通过光解过程产生处于振动激发态的一氧化氮完成写入过程，然后通过共振激发完成读取过程，最终实现速度测量^[22-24]。

NO化学性质相对稳定，适用于低温和高温气流环境。由于NO具有较小的反应截面，因此在测量所需的时间尺度内可以保证稳定性，并且NO示踪剂的位移较其他分子示踪剂可以长得多。所以VENOM特别适合用于测量缓慢移动、高淬火的流场。生成NO的光解反应可表示为



式中： $\text{NO}_2(\text{X}^2\text{A}_1)$ 为处于基态的二氧化氮分子； $\text{NO}(\text{X}^2\Pi)$ 为光解生成的处于基态的一氧化氮； $\text{O}(\text{P})$ 为光解过程中生成的氧原子。当 NO_2 的浓度足够高时， NO_2 与 O 之间还会发生新的反应产生 NO ，反应如下



这一反应会进一步增加 NO 浓度，可提升信号强度。

2.5 空气光解-重组示踪测速技术

空气光解-重组示踪测速 (Air Photolysis And Recombination Tracking, APART) 技术由荷兰拉德堡德大学的 Sijtsema 等人提出，与 VENOM 非常相近^[25-28]。两者都是基于 NO 分子的稳定性，通过反应生成 NO ，然后通过共振激发完成读取，实现速度测量；不同点在于 APART 技术形成 NO 的两种物质—— N_2 和 O_2 分子可以直接从空气中获得。 $\text{O}(\text{P})$ 和 N_2^+ 是生成 NO 的主要前驱物。193 nm ArF 准分子激光的能量位于 O_2 的舒曼-朗格体系内，导致被激发的 O_2 分子解离为 $\text{O}(\text{P})$ 原子。 N_2 分子在 ArF 激光带宽内不具有单光子吸收带，但在 ArF 激光的聚焦区域可发生多光子吸收过程形成 N_2^+ 离子，进而生成示踪分子 NO 用于超声速流和反应流中的测速。VENOM 和 APART 技术都是十分优秀的技术，但是在测速过程中利用的 NO_x ，属于有毒气体，因此不适用于开放流场尤其是大尺度流场中的测量。APART 测量装置如图 6 所示。

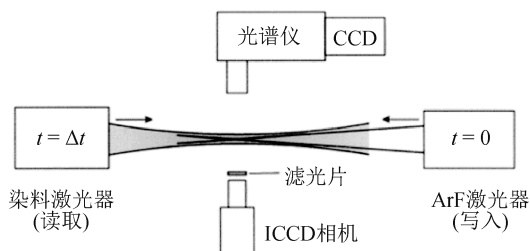


图6 APART测量装置图^[25]

Fig.6 Experimental setup of APART measurement^[25]

2.6 氪原子标记示踪测速技术

氪原子标记示踪测速 (Krypton Tagging Velocimetry, KTV) 技术由奥多明尼昂大学的 Mills 等人提出^[29]，整个过程如图 7 所示。使用 214.7 nm 的紫外激光通过双光子共振过程将氪原子从 $4p^6$

($^1\text{S}_0$) 状态激发至高能级 $5p(3/2)_2$ 状态，再经过自发辐射将氪气分子激发至中间的亚稳态 $5s(3/2)_2^0$ ，实现写入过程；再通过共振激发完成读取过程，实现标记测速。此过程与前述其他分子标记示踪测速技术在需要读写两套系统方面几乎没有区别^[30]。但近几年的研究发现^[31]，在“写入”过程中，亚稳态 Kr 来自于通过自发辐射的衰变，且亚稳态 Kr 还存在重组过程的贡献，但比重很低。而在“读取”中，则发生了相反的现象，即重组过程中的荧光占主导地位，且由氪原子电离引发的重组过程导致发光的时间尺度比自发辐射长。当激发的激光能量足够时，甚至重组过程导致的发光就能够以足够的信噪比成像来完成测速。这使得 KTV 只通过激光写入过程完成速度测量成为可能，然而由于以氪原子作为标示物，意味着流场中必须提前掺混稀有气体氪气，这给实际测量带来了一定的限制。

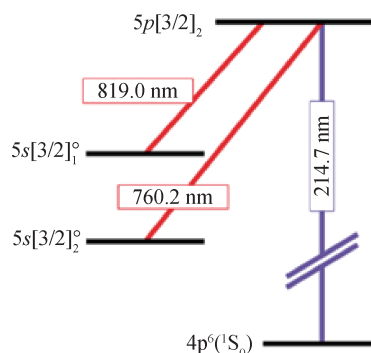


图7 KTV原理示意图^[30]

Fig.7 Schematic diagram of KTV^[30]

总体来说，基于纳秒激光的分子标记示踪技术几乎都有以下共通点：测量写入过程都是通过激光诱导光解，或其他更加复杂的光化学反应，产生可以在流场中稳定存在的亚稳态物质，之后的读取过程则是借助激光诱导荧光技术完成对处于亚稳态物质的激发，实现速度信息的提取。这也意味着基于纳秒激光的分子标记示踪技术需要2套激光系统完成，且激光诱导荧光技术需要共振激发，这对读取过程的激光器又提出了调谐的要求。这些要求提升了系统复杂度和成本，限制了这些技术的实际应用。纳秒分子标记示踪测速技术对比如表1所示。

表1 纳秒分子标记示踪测速技术

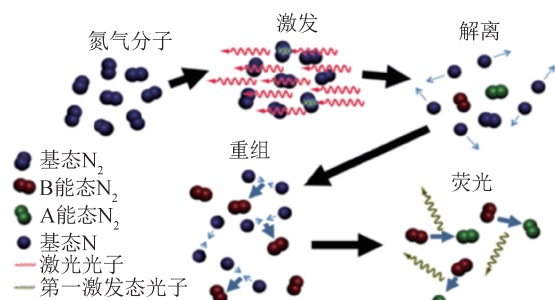
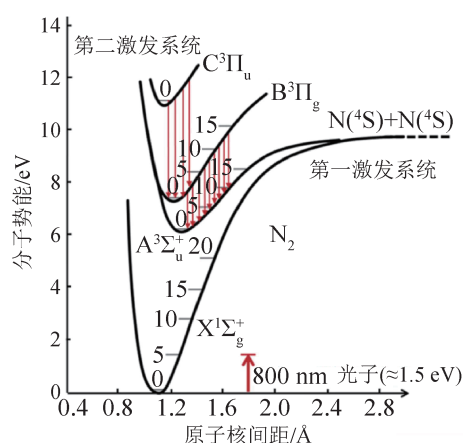
Tab.1 Molecular tagging velocimetry based on nanosecond laser

示踪剂	测速技术	测速技术特点
OH	HTV	要求流场中含有 H_2O , 且流场中 O 原子浓度严重影响 OH 的荧光寿命
O_2	RELIEF	不适用与燃烧流场
O_3	OTV	流场温度严重影响 O_3 浓度, 适用于低温空气流场
NO	VENOM	光解 NO_2
		可应用于荧光猝灭率高的流场
		激发 NO
	APART	仅适用于荧光猝灭率低的高速流场
Kr	KTV	适用于空气流场, 且不需要引入任何示踪分子
		流场中需要混入稀有气体氪气

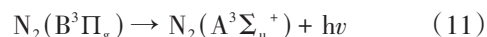
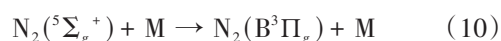
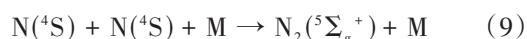
3 飞秒激光分子标记示踪测速技术

飞秒激光分子标记示踪测速技术是基于高能飞秒激光诞生的测速技术, 其与纳秒激光分子标记示踪测速技术的不同在于: 飞秒激光的高峰值功率会诱发气体分子的一系列复杂变化, 形成能够自我维持的长寿命 (可达几十微秒量级) 发光过程, 而且不受限于激光波长。该技术从原理上省去了激光读取标记物位置的过程, 只需要高能飞秒激光器即可实现激发过程, 相较于纳秒激光分子标记示踪测速技术, 大幅简化了光路和激发装置。

目前飞秒激光分子标记示踪测速技术中最典型的是飞秒激光电子激发标记示踪测速 (Femto-second Laser Electronic Excitation Tagging, FLEET) 技术, 该技术以氮气作为标示物, 通过多光子过程解离氮气分子, 氮气分子在重组过程中从基态转变为激发态, 最后通过自发辐射释放位于 550~750 nm 范围内的荧光。FLEET 的原理如图 8 所示, N_2 能级如图 9 所示。

图8 FLEET原理示意图^[32]Fig.8 Schematic diagram of FLEET^[32]图9 N_2 能级图^[32]Fig.9 N_2 energy level^[32]

FLEET的重组过程中涉及的核心反应为



式中: $\text{N}(^4\text{S})$ 为光解后产生的氮原子; $\text{N}_2(^5\Sigma_g^+)$ 为反应过程中产生的非稳态氮气分子, 其会快速转变为 $\text{N}_2(\text{B}^3\Pi_g)$ 等; $\text{N}_2(\text{B}^3\Pi_g)$ 为位于第二激发系统的氮气分子; $\text{N}_2(\text{A}^3\Sigma_u^+)$ 为 $\text{N}_2(\text{B}^3\Pi_g)$ 自发辐射后产生的处于第一激发系统的氮气分子; M 为参与反应的任意气体分子。

然而上述反应仅能解释光化反应的起步过程, 对后续自发的持续性发光过程的解释仍需进一步研究完善。目前 FLEET 产生的辐射可以在大气压力下的氮气中持续 150 μs , 可在空气中持续 80 μs 。与纳秒激光的标记测速方法相比, 飞秒激光具有更高的峰值功率强度, 对湍流中小结构的测量具有更好的适应性, 因此 FLEET 被认为是目前分子

标记示踪测速技术中对于超声速乃至高超声速流场中速度测量适应性最佳的技术。美国普林斯顿大学^[32-38]、普渡大学^[39-40]、桑迪亚国家实验室^[39-42]、NASA 兰利研究中心^[43-45]和光谱能源公司^[46-51]等均对该技术展开了系统的研究。但是在面对极端复杂的高超声速流场环境时,目前 FLEET 仍存在信号强度不足、易受碰撞猝熄影响的限制,而且极高的峰值功率会诱发多光子吸收,引入测量干扰。通过共振激发、添加前驱物调控光化学反应等方式可提升荧光信号强度,减少所需飞秒脉冲能量,以达到提高测量精度、减少干扰的目的。

3.1 共振激发

共振激发技术中最具代表性的是双光子共振激发飞秒激光分子标记示踪测速技术 (Selective Two-Photon Absorptive Resonance Femtosecond Laser Electronic Excitation Tagging, STARFLEET), 该技术由 N. Jiang 等人提出^[48], 在 FLEET 的基础上通过对飞秒激光脉冲的波长进行调谐, 提升激发效率。通过 202.25 nm 的双光子吸收过程实现了 N_2 的共振激发, 被激发的 N_2 吸收第三个光子电离产生等离子体, 之后复现 FLEET 的激发过程。STARFLEET 的测量结果如图 10 所示。STARFLEET 与 FLEET 均能通过激发 N_2 荧光获得速度信息, 但与传统 FLEET 技术相比, STARFLEET 大大降低了产生 N_2 荧光所需的单脉冲能量 (从 1.1 mJ/pulse 下降到了 0.03 mJ/pulse)。但由于 202.25 nm 的飞秒激光处于深紫外波段, 获取难度相对较大, 转换效率相对较低, 在一定程度上限制了 STARFLEET 的进一步应用。

3.2 添加前驱物调控光化学反应

由于飞秒激光具有极高的峰值功率, 因此在诱发氮气的过程中, 还伴生多光子电离、光解重组、光化学反应等过程, 实际上飞秒激光经过的区域已经被转化成离子体反应池, 可以通过调控其中的光化学反应, 实现信号的增强调控等目的。

3.2.1 氩气掺混提升荧光信号强度

普林斯顿大学的 Miles 课题组提出通过掺混氩气的方式提升信号强度^[34], 具体反应为

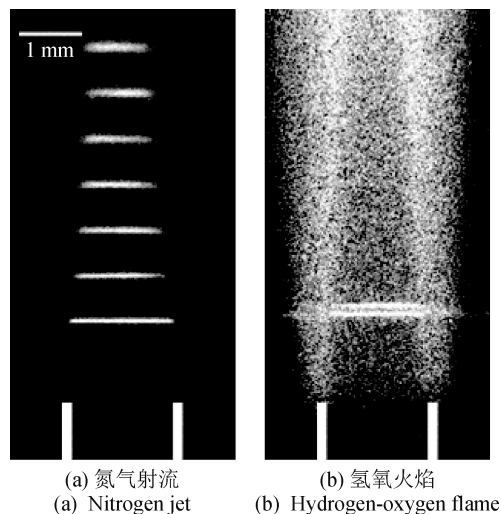
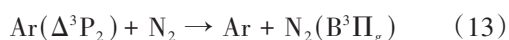
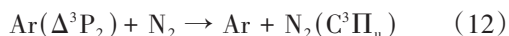


图 10 STARFLEET 的测量结果图^[48]

Fig.10 STARFLEET measurement results^[48]



式中: $Ar(\Delta^3P_2)$ 为经飞秒激光电离重组、电子激发等过程处于激发态的氩气原子。

氩气的电子碰撞截面大小约为氮气的电子碰撞截面大小的四倍, 因此氩气在等离子体中比氮气更容易与电子相互作用并被激发, 而被激发的氩气就可以通过式 (12) 至式 (14) 反应, 将能量传递到氮气分子上, 并完成激发过程, 最终实现氮气荧光信号的增强。然而经实验发现, 氩气的掺混比例至少需达到总气体比例的 20% 以上才会有明显的增强效果, 因此这种方式虽然能够显著提升总体信号强度, 但如此大比例的掺混氩气会对气体性质造成显著影响, 限制了其在流场测量方面的应用。

3.2.2 甲烷掺混提高荧光信号强度

相较上述掺混氩气的方案, 另一条技术路线可能更具有应用潜力, 即飞秒激光诱导氰基荧光标记测速技术 (Femtosecond Laser-Induced Cyano Chemiluminescence, FLICC), 该技术由天津大学的李博课题组提出^[52], 依托 CN 能够从激发态 N_2 中获取能量的特性, 实现依附在氮气荧光长寿命机制上的标记测速。该技术通过掺混极其微量 (10^{-5} 量级) 的甲烷就可达到非常明显的信号增强效果, 所涉及的主要化学反应如表 2 所示。CH₂ 为甲烷光解的中间产物甲烯基团, CN($X^2\Sigma$) 为处于基态的氰基基团, CN($B^2\Sigma$) 为处于激发态的氰基基团。经过表 2 中的反应, 氮气荧光被转化为 CN 荧

表2 飞秒激光诱导氰基发光

Tab.2 Femtosecond laser-induced cyanoluminescence

反应产物	反应方程式
CN($X^2\Sigma$)	$N + CH_2 \rightarrow CN(X^2\Sigma) + H_2$
	$N + CH_2 \rightarrow CN(X^2\Sigma) + H + H$
	$C + N_2 \rightarrow CN(X^2\Sigma) + N$
CN($B^2\Sigma$)	$CN(X^2\Sigma) + N_2(A^3\Sigma_u) \rightarrow CN(B^2\Sigma) + N_2(X^1\Sigma_g^+, v=0)$
	$CN(X^2\Sigma) + N_2(B^3\Pi_g) \rightarrow CN(B^2\Sigma) + N_2(X^1\Sigma_g^+, v=0)$
	$CN(X^2\Sigma) + N_2(X^1\Sigma_g^+, v \geq 12) \rightarrow CN(B^2\Sigma) + N_2(X^1\Sigma_g^+, v=0)$
CN荧光	$CN(B^2\Sigma) \rightarrow CN(X^2\Sigma) + h\nu$

光, 且信号远强于原本氮气的荧光信号(受甲烷浓度影响), 这意味着飞秒激光诱导氰基荧光标记测速技术的实际测量效果应当更好。

4 总结与展望

介绍了在高超声速领域具备较高应用潜力的分子标记示踪测速技术, 包括KTV, OTV, HTV, RELIEF, VENOM, APART等纳秒激光分子标记示踪测速技术以及FLEET, STARFLEET等飞秒激光分子标记示踪测速技术, 从原理角度分析、对比各技术的优势和局限性, 为高超声速流场速度参数测量技术的高可靠性、高准确性发展提供参考。

纳秒激光诱导分子标记示踪测速技术是基于激光诱导荧光技术发展起来的测速技术, 可使用OH, O₂, O₃, NO, Kr等多种分子进行示踪测速, 灵活多变, 针对不同的流场环境可以采用不同的方法以满足测量需求, 但是其“读-写”两段式的测量模式也带来一些限制, “读-写”过程意味着需要两套激光系统, 这增加了测量成本和系统的复杂性, 仅有氮气分子标记示踪测速技术在原理上可能实现“读-写”两段式过程中读取过程的省略, 实现系统的简化。

飞秒激光分子标记示踪测速技术具备只通过写入过程就可以完成测量的能力, 其光路复杂度和装置复杂度相较纳秒激光分子标记示踪测速技术明显降低。由于氮气是空气中的主要成分, 这使得飞秒激光分子标记示踪测速技术可以应用于超声速流场、燃烧流场等各类流场的测量, 且无需添加额外的示踪剂。飞秒激光分子标记示踪测速技术已成为目前最具潜力的分子标记示踪测速技术, 随着相关研究的进一步推进, 未来飞秒激光分子

标记示踪测速技术将为高超声速飞行器、跨大气层飞行器等设备的研制提供更先进的技术保障。

参考文献

- [1] WANG C P. Laser doppler velocimetry [J]. Journal of quantitative spectroscopy and radiative transfer, 1988, 40 (3): 309-319.
- [2] UPSCHULTE B L, MILLER M F, ALLEN M G. Diode laser sensor for gasdynamic measurements in a model scramjet combustor[J]. AIAA journal, 2000, 38(7): 1246-1252.
- [3] BIVOLARU D, CUTLER A, DANEHY P, et al. Spatially and temporally resolved measurements of velocity in a H₂-air combustion-heated supersonic jet [C]// 47th AIAA Aerospace Sciences Meeting Including The New Horizons Forum and Aerospace Exposition. 2009: 27.
- [4] SEASHOLTZ R, ZUPANC F, SCHNEIDER S. Spectrally resolved Rayleigh scattering diagnostic for hydrogen-oxygen rocket plume studies [J]. Journal of propulsion and power, 1992, 8(5): 935-942.
- [5] ADRIAN R J, WESTERWEEL J. Particle image velocimetry[M]. Cambridge University Press, 2011.
- [6] UNALMIS O H, CLEMENS N T, DOLLING D S. Experimental study of shear-layer/acoustics coupling in Mach 5 cavity flow[J]. AIAA journal, 2001, 39(2): 242-252.
- [7] KOIKE S, TAKAHASHI H, TANAKA K, et al. Correction method for particle velocimetry data based on the Stokes drag law [J]. AIAA journal, 2007, 45 (11): 2770-2777.
- [8] WEHRMEYER J A, RIBAROV L A, OGUS D A, et al. Flame flow tagging velocimetry with 193-nm H₂O photodissociation[J]. Applied optics, 1999, 38(33): 6912-6917.
- [9] YE J, SHI D, SONG W, et al. Investigation of turbulence flow characteristics in a dual-mode scramjet combustor using hydroxyl tagging velocimetry [J]. Acta astronautica, 2019, 157: 276-281.

- [10] RIBAROV L A, WEHRMEYER J A, HU S, et al. Multi-line hydroxyl tagging velocimetry measurements in reacting and nonreacting experimental flows[J]. *Experiments in fluids*, 2004, 37(1): 65–74.
- [11] BLANFORD B, RUNGE W, HU S, et al. Application of hydroxyl tagging velocimetry (HTV) to measure centerline velocities in the near field exhaust of a gas turbine engine [C]//46th AIAA Aerospace Sciences Meeting and Exhibit. 2008: 235.
- [12] RIBAROV L A, WEHRMEYER J A, PITZ R W, et al. Hydroxyl tagging velocimetry (HTV) in experimental air flows[J]. *Applied physics B*, 2002, 74(2): 175–183.
- [13] MILES R, COHEN C, CONNORS J, et al. Velocity measurements by vibrational tagging and fluorescent probing of oxygen[J]. *Optics letters*, 1987, 12(11): 861–863.
- [14] MILES R B, CONNORS J J, MARKOVITZ E C, et al. Instantaneous profiles and turbulence statistics of supersonic free shear layers by Raman excitation plus laser-induced electronic fluorescence (RELIEF) velocity tagging of oxygen[J]. *Experiments in fluids*, 1989, 8(1): 17–24.
- [15] MILES R B, GRINSTEAD J, KOHL R H, et al. The RELIEF flow tagging technique and its application in engine testing facilities and for helium–air mixing studies [J]. *Measurement science and technology*, 2000, 11(9): 1272–1281.
- [16] NOULLEZ A, WALLACE G, LEMPET W, et al. Transverse velocity increments in turbulent flow using the RELIEF technique [J]. *Journal of fluid mechanics*, 1997, 339: 287–307.
- [17] PITZ R W, WEHRMEYER J A, RIBAROV L A, et al. Unseeded molecular flow tagging in cold and hot flows using ozone and hydroxyl tagging velocimetry[J]. *Measurement science and technology*, 2000, 11(9): 1259–1271.
- [18] DEBARBER P, SEGALL J, BROWN M, et al. Ozone flow tagging—a novel approach for unseeded velocity measurement [C]//26th Plasmadynamics and Lasers Conference. 1995: 1952.
- [19] RIBAROV L A, WEHRMEYER J A, BATLIWALA F, et al. Ozone tagging velocimetry using narrowband excimer lasers[J]. *AIAA journal*, 1999, 37(6): 708–714.
- [20] PITZ R W, BROWN T M, NANDULA S P, et al. Unseeded velocity measurement by ozone tagging velocimetry [J]. *Optics letters*, 1996, 21(10): 755–757.
- [21] SÁNCHEZ-GONZÁLEZ R, SRINIVASAN R, BOWERSOX R D W, et al. Simultaneous velocity and temperature measurements in gaseous flow fields using the VENOM technique[J]. *Optics letters*, 2011, 36(2): 196–198.
- [22] BATHEL B, DANEHY P, JOHANSEN C, et al. Hypersonic boundary layer measurements with variable blowing rates using molecular tagging velocimetry [C]//28th Aerodynamic Measurement Technology, Ground Testing, and Flight Testing Conference Including the Aerospace T&E Days Forum. 2012: 2886.
- [23] DANEHY P M, O'BYRNE S, FRANK A, et al. Flow-tagging velocimetry for hypersonic flows using fluorescence of nitric oxide[J]. *AIAA journal*, 2003, 41(2): 263–271.
- [24] SÁNCHEZ-GONZÁLEZ R, BOWERSOX R D W, NORTH S W. Simultaneous velocity and temperature measurements in gaseous flowfields using the vibrationally excited nitric oxide monitoring technique: a comprehensive study[J]. *Applied optics*, 2012, 51(9): 1216–1228.
- [25] SIJTSEMA N M, DAM N J, KLEIN-DOUWEL R J H, et al. Air photolysis and recombination tracking: a new molecular tagging velocimetry scheme[J]. *AIAA journal*, 2002, 40(6): 1061–1064.
- [26] DAM N, KLEIN-DOUWEL R J H, SIJTSEMA N M, et al. Nitric oxide flow tagging in unseeded air[J]. *Optics letters*, 2001, 26(1): 36–38.
- [27] NANDULA S, PITZ R, BOMINAAR J, et al. Kinetics of NO tag formation in air for unseeded molecular tagging velocimetry [C]//42nd AIAA Aerospace Sciences Meeting and Exhibit. 2004: 390.
- [28] VAN DER LAAN W P N, TOLBOOM R A L, DAM N J, et al. Molecular tagging velocimetry in the wake of an object in supersonic flow[J]. *Experiments in fluids*, 2003, 34(4): 531–534.
- [29] MILLS J, SUKENIK C, BALLA R. Hypersonic wake diagnostics using laser induced fluorescence techniques [C]//42nd AIAA Plasmadynamics and Lasers Conference in Conjunction with the 18th International Conference on MHD Energy Conversion (ICMHD). 2011: 3459.
- [30] ZAHRAKKA D, PARZIALE N J, SMITH M S, et al. Krypton tagging velocimetry in a turbulent Mach 2.7 boundary layer[J]. *Experiments in fluids*, 2016, 57(5): 1–14.
- [31] MUSTAFA M A, SHEKHTMAN D, PARZIALE N J. Single-laser krypton tagging velocimetry investigation of supersonic air and N₂ boundary-layer flows over a hollow cylinder in a shock tube [J]. *Physical review applied*, 2019, 11(6): 64013.
- [32] MICHAEL J B, EDWARDS M R, DOGARIU A, et al. Femtosecond laser electronic excitation tagging for quantitative velocity imaging in air[J]. *Applied optics*, 2011, 50(26): 5158–5162.

- [33] PETERS C J, BURNS R A, MILES R B, et al. Effect of low temperatures and pressures on signal, lifetime, accuracy and precision of femtosecond laser tagging velocimetry [J]. *Measurement science and technology*, 2020, 32(3): 35202.
- [34] ZHANG Y, SHNEIDER M N, MILES R B. Femtosecond laser excitation in argon-nitrogen mixtures [J]. *AIAA journal*, 2018, 56(3): 1060-1071.
- [35] ZHANG Y, DANEHY P M, MILES R B. Femtosecond laser tagging in R134a with small quantities of air [J]. *AIAA journal*, 2019, 57(5): 1793-1800.
- [36] DOGARIU L E, DOGARIU A, MILES R B, et al. Femtosecond laser electronic excitation tagging velocimetry in a large-scale hypersonic facility [J]. *AIAA journal*, 2019, 57(11): 4725-4737.
- [37] DOGARIU A, DOGARIU L E, SMITH M S, et al. Velocity and temperature measurements in mach 18 nitrogen flow at tunnel 9[C]//AIAA Scitech 2021 Forum. 2021: 20.
- [38] GOPAL V, PALMQUIST D, MADDALENA L, et al. FLEET velocimetry measurements in the ONR-UTA arc-jet wind tunnel [J]. *Experiments in fluids*, 2021, 62(10): 1-17.
- [39] FISHER J M, SMYSER M E, SLIPCHENKO M N, et al. Burst-mode femtosecond laser electronic excitation tagging for kHz - MHz seedless velocimetry [J]. *Optics letters*, 2020, 45(2): 335-338.
- [40] FISHER J M, BRAUN J, MEYER T R, et al. Application of femtosecond laser electronic excitation tagging (FLEET) velocimetry in a bladeless turbine [J]. *Measurement science and technology*, 2020, 31(6): 64005.
- [41] FISHER J M, CHYNOWETH B C, SMYSER M E, et al. Femtosecond laser electronic excitation tagging velocimetry in a Mach six quiet tunnel [J]. *AIAA journal*, 2021, 59(2): 768-772.
- [42] FISHER J M, MEYER T R, SLIPCHENKO M N. Grid-based femtosecond laser electronic excitation tagging for single-ended 2D velocimetry at kilohertz rates [J]. *Applied optics*, 2021, 60(34): 10714-10720.
- [43] ZHANG Y, BERESH S J, CASPER K M, et al. Tailoring FLEET for cold hypersonic flows [C]//AIAA Scitech 2020 Forum. 2020: 1020.
- [44] ZHANG Y, RICHARDSON D R, BERESH S J, et al. Hypersonic wake measurements behind a slender cone using FLEET velocimetry [C]//AIAA Aviation 2019 Forum. 2019: 3381.
- [45] ZHANG Y, RICHARDSON D, MARSHALL G, et al. Dotted-line FLEET for two-component velocimetry [J]. *Optics letters*, 2022, 47(1): 98-101.
- [46] BURNS R A, PETERS C J, DANEHY P M. Unseeded velocimetry in nitrogen for high-pressure, cryogenic wind tunnels: part I. Femtosecond-laser tagging [J]. *Measurement science and technology*, 2018, 29(11): 115302.
- [47] REESE D T, THOMPSON R J, BURNS R A, et al. Application of femtosecond-laser tagging for unseeded velocimetry in a large-scale transonic cryogenic wind tunnel [J]. *Experiments in fluids*, 2021, 62(5): 1-19.
- [48] JIANG N, HALLS B R, STAUFFER H U, et al. Selective two-photon absorptive resonance femtosecond-laser electronic-excitation tagging velocimetry [J]. *Optics letters*, 2016, 41(10): 2225-2228.
- [49] GRIB S W, STAUFFER H U, ROY S, et al. Resonance-enhanced, rare-gas-assisted femtosecond-laser electronic-excitation tagging in argon/nitrogen mixtures [J]. *Applied optics*, 2021, 60(15): C32-C37.
- [50] HSU P S, JIANG N, DANEHY P M, et al. Fiber-coupled ultrashort-pulse-laser-based electronic-excitation tagging velocimetry [J]. *Applied optics*, 2018, 57(3): 560-566.
- [51] GRIB S W, JIANG N, HSU P, et al. Velocimetry measurements in a Mach 6 Ludwig Tube [C]//AIAA SCITECH 2022 Forum. 2022: 901.
- [52] LI B, ZHANG D, LI X, et al. Femtosecond laser-induced cyano chemiluminescence in methane-seeded nitrogen gas flows for near-wall velocimetry [J]. *Journal of physics D: applied physics*, 2018, 51(29): 295102.

(本文编辑:刘圣晨)



第一作者: 李晓峰(1990—), 男, 工程师, 博士, 主要研究方向为激光诊断测量技术。



通讯作者: 武腾飞(1983—), 男, 研究员, 博士, 主要从事超快激光精密测量技术研究。