

氩第三谱带的研究进展

王 骐 赵永蓬 彭世东

(哈尔滨工业大学光电子技术研究所可调谐激光技术国家级重点实验室, 哈尔滨, 150001)

摘要: 介绍了国际上对氩第三谱带的实验和理论研究工作。实验上, 采用不同的泵浦方式, 观察了荧光谱的谱带形状, 并对时间分辨谱进行了测量。理论上, 通过光谱学和动力学两方面的计算, 对氩第三谱带的来源进行了研究。目前主要有两种假设, 即 Ar_2^{2+} 和 Ar_2^+ 离子准分子的跃迁产生该谱带。但这两种假设都只能解释部分实验现象, 因而谱带的来源至今没有确切的结论。

关键词: 氩第三谱带 离子准分子 小信号增益

Development of the study on the third continuum of argon

Wang Qi, Zhao Yongpeng, Peng Shidong

(National Key Laboratory of Tunable Laser Technology, Harbin Institute of Technology, Harbin, 150001)

Abstract: In experiment and theory, the studies on the third continuum of argon in the word are introduced. In experiment, with different pumping ways, the shape of fluorescence and time-resolved spectra are measured. Up to now the small signal gain of this continuum has been reported. In theory, with the calculations of spectrum and kinetics, the origin of the continuum is studied. There are two main hypothesis that the continuum can be emitted by the transition of Ar_2^{2+} and Ar_2^+ ionic excimers. Because either of the two hypothesis can only interpret a part of experimental results, there are no identical conclusions about the origin of the third continuum.

Key words: the third continuum of argon ionic excimer small signal gain

引 言

人们对稀有气体的第一、二谱带已进行了大量的理论和实验研究, 确定它们来源于中性准分子的最低束缚态向排斥态的跃迁。70 年代用高能手段激发产生了稀有气体 Ar(126nm), Kr(146nm), Xe(178nm) 的第二谱带激光振荡。除了稀有气体的第一、二谱带外, 另一个比它们波长长的谱带被称为稀有气体的第三谱带。稀有气体第三谱带的波长范围, 几乎覆盖了整个 VUV 和 UV 波段(400~60nm), 并且有很宽的带宽, 从数十纳米到 100nm 不等^[1]。由于具有上述特点, 人们对它一直很感兴趣。另外, 由于 1988 年 Langhoff H 的假设^[2]使人们产生了更大的兴趣。他认为这一谱带来源于双电离的离子准分子跃迁, 并认为它可能代表新一类的 UV-VUV 波段可调谐离子准分子激光器。人们在用理论和实验证明这一假设的同时, 也发现了许多与该假设矛盾的实验现象^[3~9]。这使得第三谱带的来源至今没有得出确切的结论。在所有稀有气体的第三谱带中, 对氩的第三谱带研究得最多也最为深入。所以, 氩第三谱带的研究进展情况, 反映了稀有气体第三谱带研究的现状。对氩第三谱带的理论和实验研究工作, 主要围绕探索该谱带的来源进行, 但至今仍没有确切结论。

1 实验研究进展

实验上采用了各种泵浦方式, 包括电子束激发^[10, 11]、 α 粒子激发^[12, 13]、 β 粒子激发^[3]、高

能闪光 X 射线激发^[1,8]、质子激发^[5]、放电激发^[4]、Ar⁺ 离子激发^[9]、³²S 重离子激发^[6]和 Ar (2p) 激发^[14]。人们一直希望通过实验研究,找到该谱带的来源。实验上,与氩的第一、二谱带相比,寻找第三谱带的来源要困难得多。这主要有以下几方面的原因。

1.1 氩第三谱带的峰值个数、峰值位置以及波长范围具有不确定性

在不同的泵浦方式下,氩第三谱带的峰值个数、峰值位置以及波长范围明显不同。谱带存在一个峰值时,其峰值位置一般在 180~220nm 之间变化;谱带存在两个峰值时,第一个峰值位置或者位于 180~200nm 之间,或者在 220nm 附近。第二个峰值位置变化范围从 210nm 一直到 260nm;还观察到了谱带具有 3 个峰值,其位置分别为 185nm,220nm 和 245nm^[1]。另外,谱带的波长范围也明显不同,一般在 160~300nm 之间的某一波长范围内。

综合上述所有实验结果,在 160~300nm 之间的第三谱带中,在 185nm,210nm,220nm,230nm,240nm 和 260nm 处都曾出现过峰值。但在同一实验中最多观察到 3 个峰值。故很难确定到底有几种物质参与了第三谱带的跃迁。Klein G 等人认为只有 Ar₂⁺ 一种物质参与了跃迁^[13];Langhoff H 认为有两种物质^[2];Robert E 等人认为是多种物质共同作用的结果^[1]。从我们的实验观察到的第三谱带中心位于 240nm,与文献[8,12,13]中观察到的第三谱带的第 2 个峰值位置一致。我们还测得了该谱带的小信号增益系数观察到了光腔效应。

1.2 第三谱带一般对气压有明显的依赖关系,其谱带形状随压强的改变而改变

变气压的实验中,主要实验现象有:在 180nm~190nm 之间首先出现峰值,随气压的升高,峰值位置向长波方向移动^[2,6,9];在 180nm~190nm 之间首先出现峰值,随气压的升高,除 180nm~190nm 之间的峰值外,在长波方向上又出现一个峰值^[3,5];首先在 188nm 出现峰值,随气压增加,谱带峰值位置变化很小,光强增加^[4];在 200nm 首先出现峰值,随气压增加谱带发生分裂。首先分裂成两个峰值,再增加气压谱带分裂出 3 个峰值^[1]。

根据这些变气压的实验结果,很难确定到底是几种物质参与了第三谱带的跃迁。前两种实验现象,一般用两种物质或者一种物质的不同能级参与跃迁来解释;第 3 种实验现象用一种物质参与跃迁来解释;而最后一种实验现象则用多种物质参与跃迁来解释。

1.3 氩第三谱带的形状随泵浦条件的改变而改变

不同的作者在不同的装置上采用同一种泵浦方式没有得出相同的光谱形状。即使相同气压下,同一泵浦装置在改造前后所得的光谱也不同^[1,9]。这使得很难确定谱带的来源。

1.4 时间分辨谱的不确定性

时间分辨谱测量中,观察到了 3 种实验现象:时间分辨谱的测量表现出两个时间成分,第 1 个成分对应于激发脉冲,另一个慢的时间成分,远大于泵浦脉冲。并且两个时期所产生的第三谱带几乎一致^[4];时间分辨谱只存在一个时间成分,并与泵浦脉冲保持一致^[1,8,10];时间分辨谱中只存在一个时间成分,并远大于泵浦脉冲^[6]。

时间分辨谱的测量表明,不同的实验条件下,产生氩第三谱带的物质有不同的衰变时间。因而第三谱带的时间分辨结果远比第二谱带复杂得多。显然不能像第二谱带那样,用同一物质的不同态跃迁来解释第三谱带。

1.5 杂质对第三谱带的猝灭实验,没有得出一致的结论

为了确定氩第三谱带的来源,以及确定产生氩第三谱带物质的前驱粒子,人们在氩中加入杂质,研究了各种物质对第三谱带的猝灭情况。其中研究比较多的是加入 He,其次是 H₂ 和

N_2 。在不同的实验中,相同杂质对第三谱带的猝灭作用并不相同。在介质控制放电激发氩的实验中,无论加入 He 还是 H_2 和 N_2 ,第三谱带都不能被很好地猝灭,却都对第三谱带产生了影响^[4]。在其它的实验中,加入 H_2 对第三谱带没有影响^[9],加入 He 第三谱带很容易地被猝灭掉^[2,8,9],而加入 N_2 对该谱带也有很好的猝灭作用^[3]。

1.6 实验室规模的实验装置不利于高压的研究^[1]

若在高压介质中产生强的荧光输出,需要用非常昂贵的激励手段。当对输出的光强要求较低时,实验室规模的装置可以满足激发要求,但要受到严格的条件限制。用介质控制放电和小型电子束只能激发几个大气压以内的气体。 α 粒子虽能激发高压等离子体,却产生非常弱的荧光,经常要用复杂的光子计数设备探测。

以上 6 方面的原因使得人们对第三谱带研究了 30 多年,对其来源却一直没有得出确切的结论。各种实验现象的不一致性,表现出氩的第三谱带具有复杂的结构。通过这些实验现象来确定第三谱带的来源,至今仍没有得出确切的结论。

2 理论研究进展

对氩第三谱带的理论研究,主要是对其来源进行各种假设。最初认为它来源于氩离子和电子的复合谱^[3],这一假设很快被 Ar_2^* 准分子产生氩第三谱带取代。但 Ar_2^* 的设想被 Langhoff H 否定了^[2]。也有人认为 Ar_2 分子 $^1\Sigma_u^+$ 态的左转变点辐射产生该谱带,但第二谱带与第三谱带之间的 155nm 附近光谱,被认为来源于这一跃迁。

在 1980 和 1981 年, Klein G 等人利用脉冲放电泵浦,没有观察到氩的第三谱带,证明了第三谱带的激发态位于电离能之上。接下来,他们用 α 粒子激发,观察到了氩第三谱带波长范围在 160~290nm 之间,并观察到两个峰值分别位于 183nm 和 240nm^[13]。他认为 Ar_2^{+*} ($^2\Sigma_u^+$) \rightarrow Ar_2^+ ($^2\Sigma_g^+$) + $h\nu$ 和 Ar_2^{+*} ($^2\Sigma_u^+$) \rightarrow Ar_2^+ ($^2\Pi_g$) + $h\nu$ 辐射过程分别产生 183nm 和 240nm 为中心的谱带。根据这一假设解释了外加电场对第三谱带影响很小,以及第三谱带在小于 3MPa 气压范围内,其激发态寿命为 5.0ns 几乎不依赖于气压的实验现象。

Klein G 的这一假设被 Langhoff H 于 1988 年否定了,同时 Langhoff H 提出氩第三谱带中心位于 185nm 一段来源于 Ar_2^{2+} 离子准分子跃迁^[2]。认为在增加气压时谱带中心向长波方向移动是由 Ar_3^{2+} 辐射跃迁引起的。这样解释了第三谱中存在两个峰值,但并没给出 Ar_3^{2+} 跃迁对应的具体波长。他认为 $Ar^{2+} + 2Ar$ 的反应中可以形成稳定的分子,第三谱带来源于 $[Ar^{2+}Ar]^{2+}$ 向排斥基态 $Ar^+ + Ar^+$ 的跃迁。根据 Ar_2^{2+} 的假设认为在 Ar/He 气体混合物中未发现第三谱带是因为 $Ar^{2+} + He$ 的双体猝灭速率很大,阻止了 Ar_2^{2+} 的形成。根据 Ar_2^+ 与 Ar 生成 Ar_3^+ 三体反应的高速率,认为 Ar_2^{2+} 与 Ar 三体反应生成 Ar_3^{2+} 的速率也很高。在气压增加时, Ar_3^{2+} 的粒子数密度逐渐增加,它的发射使得第三谱带在高压时中心向长波方向移动。

Langhoff H 根据这一假设认为, Ar_2^{2+} 离子准分子将代表新一类可调谐 UV 激光器^[2]。然而 1994 年, Schumann M 和 Langhoff H 对利用 Ar_2^{2+} 辐射衰变产生激光振荡的可能性进行了动力学分析,并讨论了 Ar_2^{2+} 的猝灭过程^[7]。认为增加 Ar_2^{2+} 密度以实现电子束泵浦下的光学增益是不可能的。他的这一结论以及第三谱带研究中所面临的种种困难,使得人们对该谱带的研究兴趣有所减少,1994 年以后,很少有理论和实验方面的报道。以至于 1996 年以后,关于第三谱带的理论和实验研究极难找到。Langhoff H 的假设并没有得到理论和实验的很好证

明,甚至还观察到了一些与该假设相反的实验现象。因而还不能认为第三谱带中,中心位于240nm的光谱不能实现激光振荡。在我们最近的小信号增益的测量中,得到了该段光谱的小信号增益系数为 0.03cm^{-1} ^[15],并观察到了明显的光腔效应。这些实验结果,使得有希望在这段光谱内实现激光振荡。而且我们的实验及理论研究结果支持了Cachoncinlle C提出的Ar第三谱带中长波部分,来源于与Klein G不同的 Ar_2^+ 激发态的跃迁^[16]。1992年,Cachoncinlle C等人经计算^[16,17], Ar_2^{2+} 能级跃迁只能产生185nm附近的光谱。而 Ar_2^{+*} 能产生氩第三谱带两个峰值(185nm和240nm)对应的全部光谱。

Ar_2^{+*} 产生整个第三谱带两个峰值的假设也有一些理论和实验的支持。但由于Klein G关于 Ar_2^{+*} 的假设被Langhoff H否定了,而Cachoncinlle C等作者关于 Ar_2^{+*} 辐射跃迁产生第三谱带的假设1992年才提出,并且在这之后关于第三谱带的研究逐渐减少,因此,对 Ar_2^{+*} 假设的讨论没有 Ar_2^{2+} 深入。但这一假设可解释一些用Langhoff H假设无法解释的实验现象。如Ar和Kr气体第三谱带的两个峰值对气压有非常相似的依赖关系^[8,9],以及氩第三谱带的两个峰值对氦的猝灭同样敏感^[8]。这些现象说明,第三谱带的两个峰值来源于同一物质不同态之间的跃迁。另外,Boichenko A M等人根据 Ar_2^{+*} 的假设,解释了第三谱带的辐射脉冲远大于泵浦脉冲的实验现象,以及没有在固态Kr中观察到第三谱带,是因为 Kr_2^{+*} 寿命在固态情况下非常短(0.3ns)造成的^[18]。

3 结 论

根据所获得的实验现象和理论分析表明,氩第三谱带具有复杂的结构,其来源不能用一种粒子的跃迁来解释。另外,由于近几年来对该谱带研究的日益减少,使得波长大于200nm光谱的来源问题更难得出确切的结论。我们根据实验中测得的240nm附近光谱的小信号增益,及观察到的光腔效应,否定了Langhoff H的 Ar_2^{2+} 产生这一段光谱的假设,支持Cachoncinlle C的观点,认为该段光谱来源于 Ar_2^{+*} 离子准分子。根据这一假设,我们初步理论计算表明, Ar_2^+ 粒子数密度的最大值可达 $8 \times 10^{14}\text{cm}^{-3}$,比 Ar_2^{2+} 粒子数密度大一个数量级以上。根据 Ar_2^+ 粒子数密度计算得增益约为 0.02cm^{-1} ,与我们实验测得的结果相近。但仅靠这些数据,仍不能最后确定该段光谱的来源。

参 考 文 献

- 1 Robert E, Khacef A, Cachoncinlle C *et al.* Opt Commun, 1995; 117: 179
- 2 Langhoff H. Opt Commun, 1988; 68(1): 31
- 3 Strickler T D, Arakawa E T. J Chem Phys, 1964; 41(6): 1783
- 4 Cachoncinlle C, Pouvesle J M, Davanloo F *et al.* Opt Commun, 1990; 79(1, 2): 41
- 5 Hurst G S, Bortner T E, Strickler T D. Phys Rev, 1969; 178: 4
- 6 Krotz W, Ulrich A, Busch B *et al.* Laser and Particle Beam, 1993; 11(3): 521
- 7 Schumann M, Langhoff H. J Chem Phys, 1994; 101(6): 4769
- 8 Cachoncinlle C, Pouvesle J M, Davanloo F *et al.* J Phys D: Appl Phys, 1990; 23: 984
- 9 Griegel T, Drotleff H W, Hammer J W *et al.* J Chem Phys, 1990; 93(7): 4581
- 10 Sauerbrey R, Emmert F, Langhoff H. J Phys B: At Mol Phys, 1984; 17: 2057
- 11 Amirov A Kh, Korshunov O V, Chinnov V F. J Phys B: At Mol Opt Phys, 1987; 27: 1753
- 12 Carvalho M J, Klein G. Nucl Instrum Methods, 1980; 178: 469
- 13 Klein G, Carvalho M J. J Phys B: At Mol Phys, 1981; 14: 1283

氢/空气预混平面火焰 CARS 温度测量*

杨仕润 赵建荣 俞刚 韩百

(中国科学院力学研究所高温气体动力学开放实验室, 北京, 100080)

摘要: 介绍了一套用于燃烧研究中对温度和成分浓度测量进行校准的氢/空气预混平面火焰燃烧系统。采用氮 CARS 技术对氢/空气预混平面火焰温度进行了系统的测量, 包括不同当量比条件下的温度分布, 温度的纵向和横向空间分布。结果表明, 氮 CARS 测温与氢/空气预混平面火焰的理论计算温度之间的误差为 3.4%, 而在燃烧炉表面上方 1mm 以上的空间属于火焰的温度均匀区, 温度的不均匀性约为 1.8%。

关键词: CARS 预混平面火焰 温度测量

CARS temperature measurement of H₂/air premixed flat flame

Yang Shirun, Zhao Jianrong, Yu Gong, Han Bai

(Laboratory of High Temperature Gas Dynamics, Institute of Mechanics,
The Chinese Academy of Sciences, Beijing, 100080)

Abstract: A H₂/air premixed flat flame burner as calibration source for CARS temperature and species concentration measurements was established. Temperatures for various stoichiometries along longitude and transverse have been systematically measured by N₂ CARS. The results indicate that difference between measurement temperature and the corresponding theoretical value is about 3.4 percent. Whereas temperature is nearly invariant beyond 1 mm above the burner surface, the associated error is around 1.8 percent.

Key words: CARS premixed flat flame temperature measurement

引 言

预混平面火焰是一种稳定的且具有一维特征的标准火焰。平面火焰燃烧炉因为具有火焰温度和燃烧成分浓度的时间和空间均匀性, 使其常被用作燃烧研究中温度和成分浓度测量技术的校准源^[1~3], 而且, 对于氢和空气预混燃烧, 可以采用较宽范围的混合当量比变化, 从而获得较宽范围的温度和燃烧成分浓度的变化。

* 国家自然科学基金资助。

- 14 Ruhl E, Heinzel C, Jochims H W. Chem Phys Lett, 1993; 211: 403
15 Yongpeng Z, Qi W, Shaohong G *et al.* SPIE, 1998; 3549: 221
16 Cachoncinlle C, Pouvesle J M, Durand G *et al.* J Chem Phys, 1992; 96(8): 6093
17 Cachoncinlle C, Pouvesle J M, Durand G *et al.* J Chem Phys, 1992; 96(8): 6085
18 Boichenko A M, Derzhiev V I, Zhilkov A G *et al.* Soviet J Q E, 1991; 21(12): 1305

作者简介: 王 琪, 男, 1942 年 3 月出生。教授, 博导。主要从事 VUV 及 X 光激光方面的研究工作。