

不同载气下气体相对电离度的光谱诊断*

邵旭萍¹⁾²⁾ 龚天林²⁾ 陈 艳¹⁾ 陈景霞¹⁾ 陈扬骥¹⁾ 杨晓华^{1)†}

1) (精密光谱科学与技术国家重点实验室, 华东师范大学物理系, 上海 200062)

2) (南通大学理学院, 南通 226007)

(2009 年 5 月 14 日收到; 2009 年 6 月 22 日收到修改稿)

利用速度调制光谱技术, 以 N_2^+ 为分子探针, 研究了 N_2 在不同缓冲气体(氦和氖)下的电离行为. N_2^+ 某一振转吸收谱线的强度与速度调制的调制度和 N_2^+ 浓度成正比, 因而通过测量两种缓冲气体下光谱强度, 即可推算出相对电离度.

关键词: 速度调制, 调制度, 电离系数, 等离子体诊断

PACC: 3320, 5270K

1. 引 言

电离度是等离子体放电的一个重要参量, 它反映等离子体的电离程度. 电离度的大小与施加在气体上的电场、气体的气压、工作气体及缓冲气体的种类等有关. 因此, 定量或相对定量地研究电离度对各参量的依赖关系, 对于等离子体物理及应用具有重要的基础意义. 探针法和微波法是目前诊断电离系数的主要方法^[1], 但它们是一种介入测量方式, 需要深入到等离子体内部, 容易对等离子体产生干扰, 而且探针法对于高电离度或高温等离子体难以适用. 理论方法在一定程度上可以计算或模拟等离子体内部的过程, 但总是与实验存在一些差距, 有时也需要一些必要的实验测量值作为参量. 光谱诊断, 作为一种不介入诊断方法, 可以测量等离子体内的温度、化学组分乃至电场等^[2, 3]. 本文利用光外差-速度调制激光光谱技术 (optical heterodyne velocity modulation spectroscopy, OH-VMS)^[4], 研究了 N_2 在 He 和 Ne 两种缓冲气体下的相对电离度, 有助于我们认识潘宁电离中缓冲气体的作用.

2. 实 验

OH-VMS 实验装置在文献 [4] 中已有详细描述. 概括地讲, 全固化绿光激光器 (coherent verdi-10 @ 532 nm) 抽运的钛宝石激光器 (coherent ring 899-29) 作为光源, 激光束经电光调制器 (EOM) 进行频率为 480 MHz 的相位调制后进入水冷样品吸收池. 样品池内两端各有一个不锈钢空心圆筒电极, 加以高压对气体进行交流放电. 放电频率为 37 kHz, 放电电流峰值为 300 mA. 放电而产生的离子同时受到交流电场力的作用, 产生与电场同频和几乎同相的周期性漂移^[5] (速度调制). 由于多普勒效应, 等价于离子能级受到电场的周期性调制. 激光束穿过样品池由 PIN 探测器探测后, 先经双平衡混频器 (DBM) 在 480 MHz 频率下进行相位解调 (光外差检测), 再由锁相放大器在放电频率上进行速度解调 (1f) 而获得分子离子光谱信号. 计算机负责激光器的扫描和光谱数据的采集, 并控制激光器自带的波长计对激光绝对频率进行测量.

3. 理 论

透过介质的光强可表示为

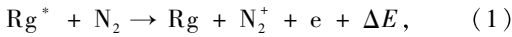
* 国家自然科学基金 (批准号: 10574045), 国家重点基础研究发展计划 (批准号: 2006CB921604), 上海市自然科学基金重点项目 (批准号: 07JC14017 和 07DZ22025) 和精密光谱科学与技术国家重点实验室资助的课题.

† 通讯联系人. E-mail: xhyang@phy.ecnu.edu.cn

$$I(l) = I_0 \exp(-n\sigma l),$$

其中 I_0 是入射光强, n 为吸收介质的浓度, σ 为吸收截面, l 为吸收程长. 在弱吸收条件下, 介质的相对吸收可近似为 $\Delta I(l)/I_0 = -n\sigma l$, 即吸收光谱的强度与吸收介质的浓度成正比. 于是, 我们可以通过测量分子离子的光谱信号强度来获得等离子体中生成的分子离子的相对浓度.

我们利用潘宁效应^[6] (Penning effect), 采用痕量母体分子与大量惰性气体混合放电产生所需的分子离子. N_2^+ 主要生成过程由方程(1)描述,



Rg^* 表示亚稳态的 He 或 Ne, e 表示电子, N_2 的电离能为 15.6 eV, He* 的势能 20 eV, Ne* 的势能为 16.68 eV.

以 He 为例, 可计算获得由潘宁效应产生的电离系数^[3]

$$a = \eta \frac{p_1 \sigma_{12}}{p_1 \sigma_{12} + p_2 \sigma_{22}} \cdot \frac{\sqrt{2} p_2 \sigma_2}{kT} \times \exp\left(-\frac{\sqrt{2} U_i (p_1 \sigma_1 + p_2 \sigma_2)}{EkT}\right), \quad (2)$$

其中 p_1 和 p_2 分别表示 N_2 和 He 的气压, r_1 和 r_2 为 N_2 和 He 的有效半径, $\sigma_1 = \pi r_1^2$, $\sigma_{12} = \pi r_{12}^2 = \pi(r_1 + r_2)^2$ 为刚性球近似下的有效碰撞截面, η 为碰撞电离的平均概率, $\frac{p_1 \sigma_{12}}{p_1 \sigma_{12} + p_2 \sigma_{22}}$ 为 He* 与 N_2 的碰撞概率. 在长度为 l 的样品池内的平均 N_2^+ 数浓度为^[3]

$$\begin{aligned} \bar{n} &= \frac{1}{l} \int_0^l [n_0 \exp(ax) - n_0] dx \\ &= \frac{n_0}{al} [\exp(al) - 1] - n_0, \end{aligned} \quad (3)$$

其中 n_0 为从阴极位降区进入正柱区中的电子数浓度, 可视为常数. 由(2), (3)两式可以获得 N_2^+ 平均浓度, 而谱线强度与 N_2^+ 平均浓度成正比, 即 $I \propto \bar{n}$.

此外, 在小调制度近似下, OH-VMS 光谱信号强度还与速度调制的调制度成正比^[7]. 在中低电场条件下, 速度调制的调制度可表示为^[8]

$$M = \frac{\delta v}{\Delta v} = 7.55 \times 10^{-5} \frac{E}{p} \sqrt{\frac{mT}{\alpha\mu}}, \quad (4)$$

其中 p 和 T 分别表示混合气体总压强和温度, m (amu) 为分子离子的质量数, α 为缓冲气体的偶极极化率, μ (amu) 为分子离子与缓冲气体的约化质量, 它影响动量传输效率.

因此, 在小吸收、小调制度近似下谱线的强度正比于离子浓度和调制度的乘积, 即 $I \propto \bar{n}M$. 综上所述, 谱线强度可表示为

$$I \propto \left\{ \frac{n_0}{al} [\exp(al) - 1] - n_0 \right\} \frac{E}{p} \sqrt{\frac{mT}{\alpha\mu}}. \quad (5)$$

4. 结果与讨论

根据(4)式, 可得相同条件下 He 和 Ne 两种载气速度调制的调制度比值为 2.55. 由于痕量母体分子和大量缓冲气体混合, 实验时母体分子气压变化范围很小, 近似认为调制度不变.

图 1 所示为保持缓冲气体气压 320 Pa、放电电流 300 mA (峰峰值) 不变时, 分别在 He 和 Ne 两种缓冲气体下, N_2^+ ($A^2\Pi_u - X^2\Sigma_g^+$) (2, 0) 振转带 Q_{11} (6.5)^[9] 转动谱线强度随 N_2 气压变化关系. 图中散点为实验测量值, 实线为依据(5)式进行非线性最小二乘拟合所获得的结果. 上节理论分析表明分子离子转动光谱强度与调制度和分子离子浓度的乘积成正比, 因此, 扣除调制度对光谱信号的贡献, 即把 He 气氛下的信号强度除以 2.55, 即可以获得两种缓冲气体下 N_2^+ 生成浓度的相对关系, 如图 2 所示.

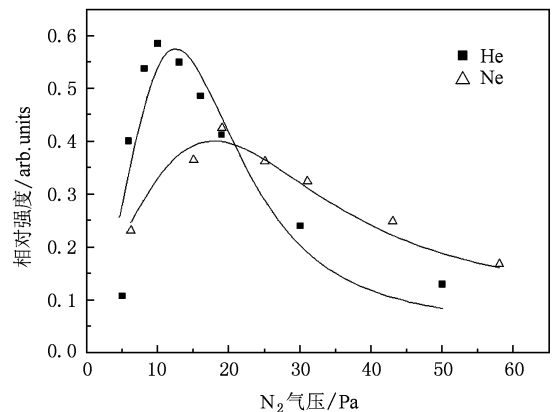


图 1 在不同的载气下谱线强度随 N_2 气压的变化关系

从图 2 可以看出, 利用 Ne 作为缓冲气体比 He 生成的分子离子浓度要略高, 在极大值点 Ne 气氛下的浓度约是 He 的 1.6 倍. 其主要原因有三点: 1) Ne* 与 N_2 的有效碰撞截面是 He* 的 1.2 倍; 2) Ne* 的能量略高于 N_2 的电离能, 产生碰撞传能使之电离的概率较大, 而 He* 的能量高于 N_2 的电离能约 5 eV, 产生碰撞传能的概率较低; 3) Ne 的质量相比与

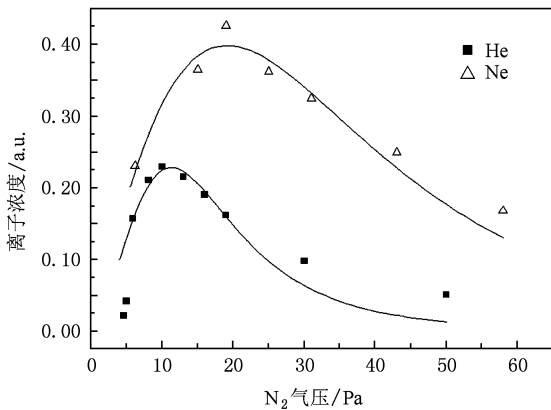


图2 在不同的载气下离子生成浓度随 N_2 气压的变化关系

He 而言,更接近 N_2 的质量,产生非弹性碰撞的概率稍高. 另外,作者曾试图采用 Ar 作为缓冲气体,结果发现 Ar 主要起对 N_2^+ 浓度猝灭的作用^[10]. 因此,对于 N_2 ,要想获得较高的等离子体浓度,Ne 为最佳缓冲气体. 当然,如果进行 VMS 光谱测量,选择 He 作为缓冲气体能获得最佳测量灵敏度.

对图 2 中的实验值根据(3)式采用非线性最小二乘法进行拟合,分别获得 He 和 Ne 气氛下正柱区电场为 805(40) V/m, 821(41) V/m, 电子温度为 4272(243) K, 4869(213) K. 于是,将拟合结果代入(4)式可得两种载气下的调制度分别为 0.667 和 0.262(调制度均小于 1, 满足小调制度近似条件). 此外,将拟合的结果代入(2)式,可以获得两种载气下相对潘宁电离系数随 N_2 气压的变化关系,如图 3 所示. 从图中可以看出,两种载气下电离系数有相似的变化规律. 利用误差传递公式可算出当分别 $p_1 = 13(1.1)$ Pa 和 $p_1 = 18(1.4)$ Pa 时,电离系数有对应的极大值. 另一方面,将(2)式对 N_2 气压求导,也可在理论上获得不同载气下电离系数极值所对应的母体分子气压,分别为 13.4 Pa 和 17.8 Pa,与图 3 中的结果相符合,且根据这一极值点的气压,可

以进一步求出该气压下 Ne 产生的分子离子浓度是 He 的 1.3 倍,与图 2 实验中浓度比值稍有差异,是因为理论模型中未考虑气压的微小变化对调制度的影响.

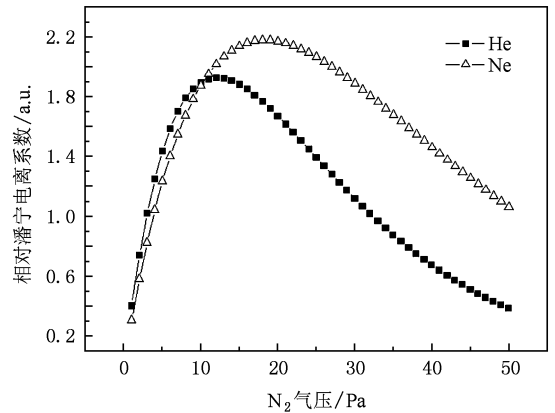


图3 在不同的载气下电离系数随 N_2 气压变化关系

5. 结 论

本文利用光外差-速度调制激光光谱技术,从调制度和生成浓度两方面较详细地比较了不同载气在潘宁电离过程中的作用. 结果表明,不同载气在调制度、离子生成浓度以及电离度等方面都有较大差异. 首先,在相同的实验条件下 He 的调制度是 Ne 的 2.55 倍,这一点决定了在速度调制激光光谱中,采用 He 作为缓冲气体能获得最佳的光谱信号. 同时,根据实验拟合获得了分子离子生成浓度和相对潘宁电离系数随 N_2 气压变化的曲线,求出了电离系数极值点对应的 N_2 气压值,以及该气压下两种缓冲气体产生的离子浓度的比值. 本文揭示了两种载气在潘宁放电过程中的不同作用,理论和实验结果较好地符合,也表明了速度调制光谱技术作为一种不介入光谱诊断技术在等离子体研究中的应用.

- [1] Chen Z Z, Gao S X 1998 *Gaseous Conduction* (Nanjing: Nanjing Institute of Technology Press) p166 (in Chinese) [陈宗柱、高树香 1998 气体导电(南京:南京工学院出版社)第 166 页]
- [2] Yang X H, Chen Y Q, Cai P P, Wang R J, Lu J J 2000 *Acta Phys. Sin.* **49** 421 (in Chinese) [杨晓华、陈扬毅、蔡佩佩、王荣军、卢晶晶 2000 物理学报 **49** 421]

- [3] Gong T L, Yang X H, Li H B, Han L K, Chen Y Q 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 418 (in Chinese) [龚天林、杨晓华、李红兵、韩良恺、陈扬毅 2004 物理学报 **53** 418]
- [4] Chen G L, Yang X H, Ying X P 2004 *Chin. Sci. Bull.* **49** 2354
- [5] Gudeman C S, Saykally R J 1984 *Ann. Rev. Phys. Chem.* **35** 387

- [6] Yang J J 1983 *Gaseous Discharge*, 1 ed (Beijing: Science Press) p90 (in Chinese) [杨津基 1983 气体放电 第一版 (北京: 科学出版社) 第 90 页]
- [7] Yang X H, Wang R J, Cai P P 1999 *Chin. J. At. Mol. Phys.* **16** 515 (in Chinese) [杨晓华、王荣军、蔡佩佩 1999 原子与分子物理学报 **16** 515]
- [8] Yang X H, Chen Y Q, Cai P P, Lu J J, Wang R J 1999 *Acta Phys. Sin.* **48** 834 (in Chinese) [杨晓华、陈扬骏、蔡佩佩、卢晶晶、王荣军 1999 物理学报 **48** 834]
- [9] Wu Y D, Ben J W, Li L 2007 *Chin. J. Chem. Phys.* **20** 285
- [10] Grieman F J, Hansen J C, Moseley J T 1982 *Chem. Phys. Lett.* **85** 53

Spectroscopic diagnosis of the relative ionization depth with different buffer gases^{*}

Shao Xu-Ping¹⁾²⁾ Gong Tian-Lin²⁾ Chen Yan¹⁾ Chen Jing-Xia¹⁾ Chen Yang-Qin¹⁾ Yang Xiao-Hua^{1)†}

1) (State Key Laboratory of Precision Spectroscopy, and Department of Physics, East China Normal University, Shanghai 200062, China)

2) (School of Science, Nantong University, Nantong 226007, China)

(Received 14 May 2009; revised manuscript received 22 June 2009)

Abstract

Using N_2^+ as the molecular probe, we investigate the ionization behavior of the nitrogen molecule buffered in different rare gases (helium and neon) by optical heterodyne velocity modulation spectroscopy. The spectral intensity of an individual rovibronic line of N_2^+ is proportional to the product of the velocity modulation index and the concentration of N_2^+ . Therefore, the relative ionization depth can be deduced via measuring the spectral intensity in different buffer gases.

Keywords: velocity modulation, modulation depth, coefficient of ionization, plasma diagnosis

PACC: 3320, 5270K

^{*} Supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No 10574045), the National Key Basic Research and Development Program of China (Grant No. 2006CB921604), the Basic Key Program of Shanghai Municipality (Grant Nos. 07JC14017 and 07DZ22025), and State Key Laboratory of Precision Spectroscopy.

[†] Corresponding author. E-mail: xhyang@phy.ecnu.edu.cn