

一个产生瞬变物种的脉冲放电/激光溅射分子束装置^y

张树东^{1,2}, 罗晓林¹, 阚瑞峰¹, 孔祥蕾¹, 张伟¹, 李海洋¹

(1 中国科学院安徽光学精密机械研究所环境光谱学实验室, 安徽 合肥 230031;

2 西北师范大学物理与电子工程学院, 甘肃 兰州 730070)

摘要: 建立了一套用于产生瞬变物种的脉冲放电超声分子束装置, 并以 N_2 气为例, 对脉冲放电电压、相对于脉冲阀的时间延迟、放电频率以及气压等因素对发光特性的影响等进行了研究, 从转动谱线轮廓估算出分子束可将转动温度冷却在 30 K 以下。

关键词: 脉冲分子束; 超声冷却; 发光特性

中图分类号: O54.2 文献标识码: A

1 引言

大多数化学反应不是直接由稳定反应物到稳定生成物, 中间往往经历了若干基元过程, 每一基元过程都涉及瞬变的中间物的产生和消失, 这些中间物通常是瞬态分子或自由基. 因而建立一套能够产生瞬态物种的装置, 研究它们的光谱和结构, 对于了解化学反应的机理十分重要^[1-3]. 射流冷却的分子束可以有效降低分子的速度分布和分子的转动温度, 但需要较大的抽气速度和真空设备, 采用脉冲分子束技术, 可以保证样品的浓度而又不增加系统对真空度的要求, 近年来被广泛应用. 但由于制备具体物种的差异, 使得设计各有特点. 本文报道一

个可以用脉冲放电和激光溅射化学反应产生瞬态物种的脉冲分子束装置, 以 N_2 气为例, 利用 $C^3 \Pi_u - B^3 \Pi_g$ 的发光光谱, 研究了脉冲放电过程各种实验参数对激发态 N_2 发光强度和转动温度影响.

2 实验装置

图 1(a) 为分子束装置. 气体样品经过载气脉冲电磁阀(General Valve Series 9)喷出, 在流经喷口外的放电极时, 给电极加上放电脉冲, 使样品分子解离, 通过初级或次级反应产生各种活性的中间物, 如自由基、离子和瞬态分子. 同时, 一束脉冲激光作用在金属靶上, 从而烧蚀出金属热原子和离

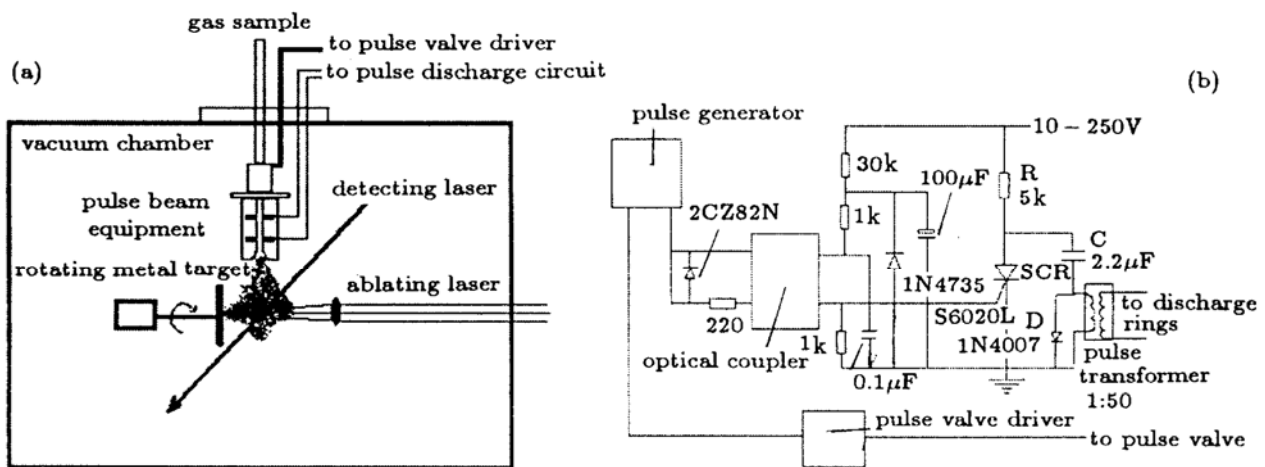


图 1 (a) 脉冲放电超声分子束装置; (b) 脉冲放电驱动电路

收稿日期: 2002 - 03 - 20; 修改日期: 2002 - 06 - 03

* 基金项目: 国家自然科学基金资助项目(20073042)

作者简介: 张树东(1966-), 男(汉族), 甘肃白银人, 讲师, 从事激光光谱学研究工作.

子, 与脉冲束产生的瞬态物种碰撞, 有可能产生含金属的自由基, 该产物可通过激光诱导荧光等手段加以探测. 放电电极为圆环形, 内外直径分别为 4 和 16 mm, 厚 3 mm, 用不锈钢制成. 整个电极潜入用聚四氟乙烯材料制作的绝缘架中. 脉冲阀的开启及放电脉冲的产生均通过脉冲发生器触发相应的驱动电路完成, 如图 1(b). 外触发信号通过光电耦合器后控制可控硅 S6020L 的导通和关闭. 在可控硅关闭期间, 电容 C 通过电阻 R 和二极管 D 充电. 当可控硅导通时, 电容上的电荷则通过可控硅 SCR 和脉冲变压器放电, 从而在脉冲变压器的输出端产生高压脉冲电压. 脉冲变压器的匝数比为 1: 50.

3 结果和讨论

3.1 脉冲放电总发光信号的测试

以 N_2 气为测试样品. 在垂直分子束的方向, 用光电倍增管对放电产生的光进行测量, 信号波形通过 100 MHz 的数字存储示波器记录. 实验表明, 发光的特征与许多因素有关. 包括放电所加的输入电压、放电脉冲与脉冲阀的相对时间延迟、脉冲阀的开启时间宽度、脉冲阀内的气体压强、放电的频率、放电电极间距以及探测高度等. 下面给出一组典型的结果.

图 2(a) 是在放电频率为 10 Hz, 脉冲阀内气压为 3 atm, 放电电极间距为 1 mm, 脉冲阀开启宽度为 300 μ s, 放电脉冲相对于脉冲阀开启 150 μ s 后, 不同输入电压对放电发光波形的影响. 波形初始的尖脉冲是放电发生时的强电磁扰动的结果, 后面较为平缓的波形即为发光信号. 显然, 放电电压越高, 发光的强度和持续的时间均有所增大. 从放电开始发生到发光波形的峰值, 时间间距仅为 10—16 μ s, 而放电区与发光探测区间距不到 20 mm, 由此可估算出粒子的速度大于 10^3 m/s. 同时还注意到在电压大于 150 V 左右, 发光的波形有一肩峰出现, 这可能是较为复杂的次级过程形成的. 图 2(b) 是在输入电压为 80 V 下, 放电脉冲相对于脉冲阀开启后的不同延迟时间下的发光波形. 实验显示, 在相对延迟为 0—200 μ s 左右, 发光的波形没有明显变化, 但大约从 250 μ s 开始, 发光有不稳定现象出现. 标志发光的平缓波形变得很弱, 而极强的尖脉冲在放电的前期随机的跳出. 这可能是由于延迟时间的增

大, 样品浓度较小, 使得放电变得不稳定造成的.

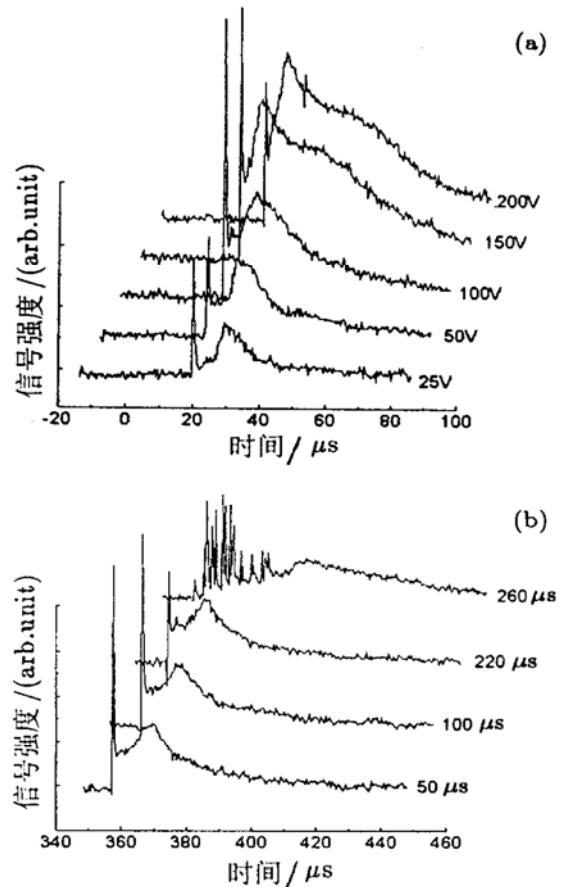


图 2 (a) 脉冲放电输入电压对发光总包信号的影响; (b) 脉冲放电相对延迟的影响

3.2 N_2 的电子激发发光谱

在输入电压为 95 V, 脉冲阀内压强为 4 atm, 放电脉冲相对脉冲阀开启时间延迟为 150 μ s 下的发光经双光栅单色仪色散, 用光电倍增管探测, 后接 BOXCAR 平均器, 测到了 N_2 分子的第二正系跃迁, 即 $C^3 \Pi_u - B^3 \Pi_g$ 跃迁的振动带, 观察到 C 态最高振动量子数达 $v' = 4$, 如图 3. 由于 C 态平衡核间距小于 B 态^[4], 即 $r_e' = 1.148 2 \text{ \AA} < r_e'' = 1.212 3 \text{ \AA}$ 因而带头出现在长波一侧, 从图 3 可明显看到向短波展开的振动带. 图 4 是对 0—1 带进行慢扫描的结果. 由于受单色仪分辨率的限制, 只能看到转动带的大致轮廓. 考虑到 C 态和 B 态均为三重态及选择定则, 那么将有 3 个亚带, 即 $^3 \Pi_2 - ^3 \Pi_2$, $^3 \Pi_1 - ^3 \Pi_1$, $^3 \Pi_0 - ^3 \Pi_0$, 不考虑 Λ 分裂, 除了 $^3 \Pi_0 - ^3 \Pi_0$, 每个亚带有一个强 P 支、一个强 R 支和一个弱 Q 支. 在转动轮廓的最大值附近, 可分辨出 3 个峰值, 且两边的两个峰值间距仅为 10 cm^{-1} 左右.

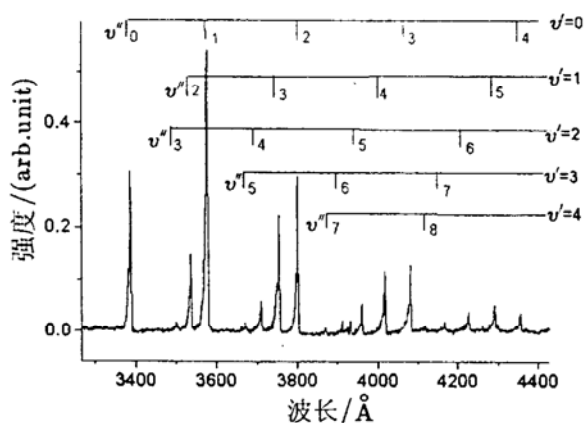


图 3 N₂分子脉冲放电下 C³Π_u - B³Π_g 跃迁的振动带

如果将这三个位置作为 P, Q 和 R 支的强度峰值, 应用热平衡下 Boltzmann 分布估算, 则转动温度在

参 考 文 献:

[1] Matthew S Beardah, Andrew M Ellis, Production and Detection of Short-lived Metal-containing Molecules in the Gas Phase: a Review [J]. J Chem Technol Biotechnol, 1999, **74**: 863.
 [2] Gary DeBoer, Piyush Patel, Amy Preszler Prince, et al. A Pulse Mixing Valve for Generating Reactive Complexes in a Supersonic Expansion [J]. Rev Sci Instrum, 2001, **72**(8): 3 375.

30K 以下. 图4中R, P和Q为相应的强度模拟值.

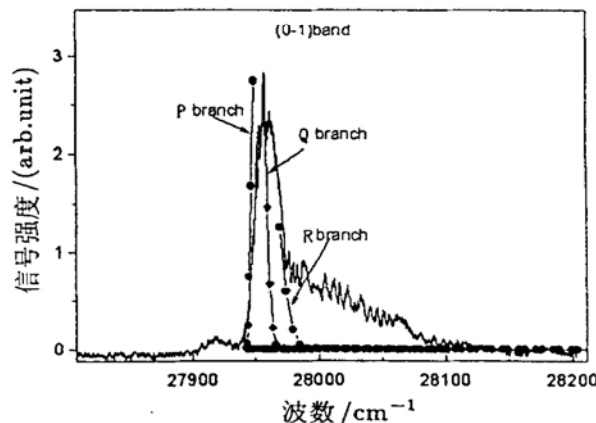


图 4 N₂分子脉冲放电下 C³Π_u - B³Π_g 跃迁 0-1 带的转动轮廓

[3] Fleniken J, Kim Y, Meyer H. Efficient Production of Vibrationally Excited NO Using a Pulsed Molecular Beam Discharge Source [J]. Chem Phys Lett, 2000, **318**: 529.
 [4] Gerhard Herzberg. Molecular Spectra and Molecular Structure[M]. I Spectra of diatomic molecules D. Van Nostrand Company, INC, New York: 1950.

A New Apparatus for Production of Jet-cooled Transient Species by Electric Discharge and Laser Ablation*

ZHANG Shu-dong^{1,2}, LUO Xiao-lin¹, KAN Ru-feng¹, KONG Xiang-lei¹, ZHANG Wei¹, LI Hai-yang¹

(1 Laboratory of Environmental Spectroscopy, Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Hefei 230031, China;

2 College of Physics and Electronic Engineering, Northwest Normal University, Lanzhou 730070, China)

Abstract: A new equipment of pulse electric discharge supersonic molecular beam is set up for producing transient species in studying metal-containing radical LIF spectra. Using N₂ gas, the effects of discharge voltage, delay time relative to the pulse valve, discharge frequency and other factors to the emission properties have been studied. Analyzing the rotational profile of C³Π_u - B³Π_g 0-1 vibration band, it is found that the rotational temperature of the molecular beam can be cooled to less than 30 K.

Key words: pulse molecular beam; supersonic cooling; illuminating property

* Foundation item: National Natural Science Foundation of China(20073042)