

放电参数对电激励产生单重态氧影响的理论研究

李留成 多丽萍 金玉奇 桑凤亭

(中国科学院大连化学物理研究所, 中国科学院化学激光重点实验室, 辽宁 大连 116023)

摘要 对于 O_2 , O_2/He , O_2/Ar 等的气体放电过程, 进行了玻尔兹曼方程的计算求解, 获得了电子能量分布函数、平均电子能量、能量利用效率等参数。计算结果表明, 获得的电子能量分布函数呈现出典型的非麦克斯韦型分布, 这说明在较低的电场强度下不宜采用麦克斯韦型分布的电子能量分布函数。在同样的约化场强 (E/N) 下纯氧放电的平均电子能量最低, 加入载气 He 和 Ar 后平均电子能量增加。同样氧气含量的 O_2/He 和 O_2/Ar 混合物, 其平均电子能量随着约化场强的变化曲线存在一个交叉点, 当 E/N 较小时, O_2/Ar 的平均电子能量较高, 而当 E/N 较大时 O_2/He 的平均电子能量较高。添加 NO 气体对击穿场强影响不大, 因此在放电气体中引入 NO, 降低电离能进而降低约化场强 E/N 并不是提高单重态氧产率的主要因素。当氧气中含有 15% 的单重态氧 $O_2(a^1\Delta)$ 时对平均电子能量有一定的影响, 但并不显著。纯氧放电的最佳约化场强为 10 Td, 随着 O_2 含量的降低, 最佳约化场强也逐渐降低。平均电子能量随着放电频率的变化先是有平台期, 然后开始一直下降。用于激发 $O_2(a^1\Delta)$ 的电子能量利用效率随着放电频率的变化在 E/N 不同时有所不同, 10 Td 时一直下降, 但 50 Td 时则呈现出先上升后下降的趋势, 存在着一个最佳放电频率, 300 K、1333.22 Pa 时的最佳放电频率为 10 GHz。

关键词 激光器; 化学氧碘激光器; 电激励氧碘激光器; 玻尔兹曼方程; 单重态氧; 放电频率

中图分类号 TN248.5 文献标识码 A doi: 10.3788/CJL201138.1202009

Theoretical Study of Influence on Discharge Parameters on Singlet Delta Oxygen Production by Electrical Excitation

Li Liucheng Duo Liping Jin Yuqi Sang Fengting

(Key Laboratory of Chemical Lasers, Dalian Institute of Chemical Physics, Chinese Academy of Sciences, Dalian, Liaoning 116023, China)

Abstract Boltzmann equation is numerically solved for the plasmas generated in the process of discharging of O_2 , O_2/He and O_2/Ar in the gas phase. Thereafter, electron energy distribution function, mean electron energy and power efficiency are obtained. The results indicate that electron energy distribution functions are typically non-Maxwellian. For the same reduced electric field (E/N), the mean electron energy for pure oxygen discharge is lower than O_2/He and O_2/Ar mixtures. For the same oxygen content, the electron energy distribution function curves versus E/N for O_2/He and O_2/Ar mixtures cross together. The O_2/Ar mixture discharge plasma has higher mean electron energy at lower E/N , while the O_2/He mixture has higher mean electron energy at higher E/N . The influence of NO additive gas on the breakdown electric field can be negligible. Therefore, the improvement of $O_2(a^1\Delta)$ yield in the presence of NO gas may be not due to the slight decrease of E/N . An addition of 15% (volume fraction) $O_2(a^1\Delta)$ into O_2 causes an increment of the mean electron energy which is not significant. In order to obtain the maximum yield of $O_2(a^1\Delta)$, the optimum E/N value of pure oxygen discharge plasma is about 10 Td. And the optimum E/N value decreases with the oxygen content. The mean electron energy as a function of the discharge frequency has a long steady baseline before its decrease. The power efficiency for excitation of $O_2(a^1\Delta)$ as a function of discharge frequency has two type curves. It decreases all the while at 10 Td. However, it rises and then goes down when the E/N is 50 Td. The optimum discharge frequency is 10 GHz for the conditions of 300 K and 1333.22 Pa.

Key words lasers; chemical oxygen iodine laser; electric oxygen iodine laser; Boltzmann equation; singlet delta oxygen $O_2(a^1\Delta)$; discharge frequency

OCIS codes 140.1340; 140.1550; 140.5560

收稿日期: 2011-06-04; 收到修改稿日期: 2011-09-12

基金项目: 国家自然科学基金(10974199)和中国科学院化学激光重点实验室开放课题(KLCL-2011-N4)资助课题。

作者简介: 李留成(1978—), 男, 博士, 助理研究员, 主要从事化学激光、模拟计算、反应动力学等方面的研究。

E-mail: liliucheng@dicp.ac.cn

1 引 言

传统的化学氧碘激光器(COIL)已经获得了巨大的成功。因为其高能量和适合于光纤传播等优点,使其在工业上有广阔的应用前景^[1]。然而,传统COIL通过Cl₂与过氧化氢溶液的气液两相反应产生单重态氧[O₂(a¹Δ)], Cl₂ + H₂O₂ + 2MOH → O₂(a¹Δ) + 2H₂O + 2MCl,其中M为K, Na, Li等碱金属元素。这种化学反应方式导致出口气体中含有较多的水汽, H₂O对激发态碘原子的猝灭很严重,这严重阻碍了COIL化学效率的提高。通过气体放电来产生单重态氧是一种较好的替代方法,它不含水,全部为气相反应,而且可以长时间工作,更可以应用于失重场合等一些特殊环境。这种通过放电方法来产生单重态氧的碘原子激光器被称为放电氧碘激光器^[2](EOIL),是目前国际上碘原子激光器的研究热点之一。

电激励氧碘激光器利用O₂(a¹Δ)的传能过程将碘原子抽运到激发态,以激发态碘原子作为激射介质,激射波长为1315 nm,继承了传统氧碘激光器的优点;同时,它采用氧气放电来产生O₂(a¹Δ),凭借着原料安全无毒、全气相操作、适应能力更强而具有更多的优势。而事实上,尽管从很早就开始了EOIL的研制,但是直到2004年才第一次获得了正的小信号增益^[3],2005年进行了出光演示^[4]。通常认为,放电氧碘激光器的成功演示得益于NO的引入^[5]。本研究小组进行了放电激励产生O₂(a¹Δ)的实验研究^[6],发现放电气体中引入NO确实使O₂(a¹Δ)产率大幅提高。研究还表明,在含有O₂(a¹Δ)的气体中进行放电对放电特性没有太大影响^[7]。放电氧碘激光器内部物种非常多而杂,有中性物种、电子、正离子、负离子等,包括NO在内的很多物种对O₂(a¹Δ)是如何影响的,及其在放电区和余辉区的反应动力学机理,迄今为止没有研究清晰透彻。这种复杂的特性导致了EOIL很难获得正的小信号增益。

为了更好地理解电激励氧碘激光器中的基本放电过程,本文通过求解玻尔兹曼方程对O₂, O₂/He, O₂/Ar及有无NO等气体的放电过程进行了数值模拟计算,考察了氧气放电约化场强E/N、氧气分支比χ_{O₂}(气体中氧气的体积分数,即氧气含量)、放电频率等参数对单重态氧产率和电子能量效率的影响。

2 理论计算模型

理论计算是建立在对玻尔兹曼方程的数值求解

的基础上的,并且只考虑包含电子碰撞过程的影响,未考虑中性粒子之间的纯化学反应。由于在放电区电子反应占主要地位,因此可以认为这样的假设是合理的。下一步将通过与实验的对比来观察该假设的合理性。

玻尔兹曼方程可以表示为

$$\frac{\partial f}{\partial t} + \mathbf{v} \cdot \nabla f - \frac{e}{m} \mathbf{E} \cdot \nabla_{\mathbf{v}} f = C[f], \quad (1)$$

式中f是六维相空间的电子分布函数, v是电子速度, e是基元电荷, m是电子质量, E是电场强度, ∇_v是速度梯度算符,而C是f的碰撞项。

为了求解玻尔兹曼方程,对其进行了简化。假定电场强度和碰撞几率在整个空间内是均匀分布的(至少在平均自由程的空间尺度上应该是均匀分布的),对速度空间使用球坐标系可得

$$\frac{\partial f}{\partial t} + v \cos \theta \frac{\partial f}{\partial z} - \frac{e}{m} E \left(\cos \theta \frac{\partial f}{\partial v} + \frac{\sin^2 \theta}{v} \frac{\partial f}{\partial \cos \theta} \right) = C[f], \quad (2)$$

式中v是速度v的大小, θ是速度方向和电场方向之间的夹角, z是沿此方向的位置坐标。注意到在此处电子分布函数f仅仅依赖于4个坐标: v, θ, t和z。

采用经典的两项近似方法,可以将f进行展开

$$f(v, \cos \theta, z, t) = f_0(v, z, t) + f_1(v, z, t) \cos \theta \exp(i\omega t), \quad (3)$$

式中f₀是f的各向同性部分,而f₁是f的各向异性扰动部分, ω = 2π/T为放电电场角频率, T为放电电场周期,对于高频电场有关系式E = E₀exp(iωt)成立。

注意到f₀和f₁与能量ε,空间z,时间t都有关系,为了得到电子能量分布函数,需要将时间因素和空间因素分离出来。根据文献[8]建议的方法,可以将能量依赖的电子数密度函数F_{0,1}与时间空间依赖的电子数密度n(z, t)分离开来, f_{0,1}(ε, z, t) = F_{0,1}(ε)n(z, t)/(2πγ³)。其中,电子能量分布函数F₀在整个空间内是均匀分布的,并且不随时间变化,归一化形式为∫₀[∞]ε^{1/2}F₀dε = 1。

经过推导可以得出关于电子能量分布函数F₀的方程

$$-\frac{\gamma}{3} \frac{\partial}{\partial \epsilon} \left[\frac{E_0^2 \epsilon \sigma_m^2}{N^2 (\sigma_m^2 + q^2)} \frac{\partial F_0}{\partial \epsilon} \right] = 2\pi\gamma^3 \epsilon^{1/2} C_0 / Nn - F_0 \epsilon^{1/2} v / N, \quad (4)$$

式中γ = (2e/m)^{1/2}为常数,电子能量ε = mv²/2e,

E_0 为电场强度, N 为总的粒子数密度, F_0 为电子能量分布函数,

$$\sigma_m = \sum_k x_k \sigma_k + \epsilon^{-1/2} \int_0^\infty \left(\sum_i x_i \sigma_i - \sum_j x_j \sigma_j \right) \epsilon F_0 d\epsilon$$

为有效动量转移截面, C_0 是 f_0 的碰撞项, n 是电子数密度, $q = \omega/N\gamma\epsilon^{1/2}$,

$$v = N\gamma \int_0^\infty \left(\sum_i x_i \sigma_i - \sum_j x_j \sigma_j \right) \epsilon F_0 d\epsilon$$

为净的电子产生系数, 下标 i 代表离子化过程, j 代表吸附过程, k 代表所有过程, χ_k 和 σ_k 分别为目标靶粒子的百分比和碰撞截面^[9]。

数值化求解(4)式可以得到电子能量分布函数 F_0 , 进而可以求出平均电子能量 $\bar{\epsilon}$, 计算公式为 $\bar{\epsilon} = \int_0^\infty \epsilon F_0 d\epsilon$ 。对于非弹性碰撞过程, 有时需要关注该过程所消耗的能量占总能量的百分比, 计算非弹性碰撞过程所消耗能量的公式为 $P_k/N = \chi_k \epsilon_k^{th} \gamma \int_0^\infty \epsilon \sigma_k F_0 d\epsilon$ 。

值得注意的是, 为了简化玻尔兹曼方程, 假设电场强度和碰撞几率在整个空间内是均匀分布的(至少在平均自由程的空间尺度上应该是均匀分布的)。然而在实际的放电过程中, 电场强度是不均匀的, 只能做到近似于均匀分布, 这一点可能对计算结果有一定的影响。

3 计算结果与分析

3.1 电子能量分布函数

在求解(4)式的过程中需要用到电子与各种粒子的碰撞截面, 其中 O_2 、He、Ar、NO 的碰撞截面数

据取自文献[9], 图 1 为计算中所用的氧气电子碰撞截面数据。

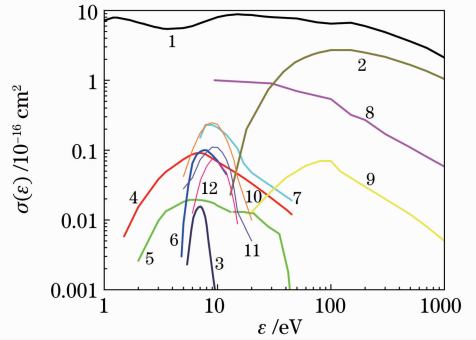


图 1 氧气的电子碰撞激发截面。(1)动量转移,(2)离子化,(3)离解性吸附,(4) $O_2(a^1\Delta)$, (5) $O_2(b)$, (6) 4.5 eV, (7) $O+O$, (8) $O+O(^1D)$, (9) $O(^1D)+O(^1D)$, (10) $v=1$ 振动态, (11) $v=2$ 振动态, (12) $v=3$ 振动态

Fig. 1 Cross sections for electron impact excitation processes of oxygen. (1) Momentum, (2) ionization, (3) dissociative attachment, (4) $O_2(a^1\Delta)$, (5) $O_2(b)$, (6) 4.5 eV, (7) $O+O$, (8) $O+O(^1D)$, (9) $O(^1D)+O(^1D)$, (10) $v=1$ vibration level, (11) $v=2$ vibration level, (12) $v=3$ vibration level

图 2(a)中两条曲线分别是通过采用麦克斯韦分布玻尔兹曼和求解 Boltzmann 方程 (non-Maxwellian) 得到的 O_2 、He 和 NO 的体积比为 0.2:0.798:0.002 混合物的电子能量分布函数(EEDF), 可以看到在所给出的试验条件下, 当平均电子能量相同时, 通过求解玻尔兹曼方程所获得的实际电子能量分布函数明显地偏离了理想的麦克斯韦型电子能量分布函数, 具体表现为较高能量的电子所占比

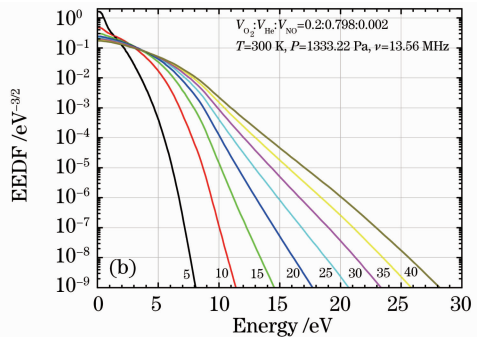
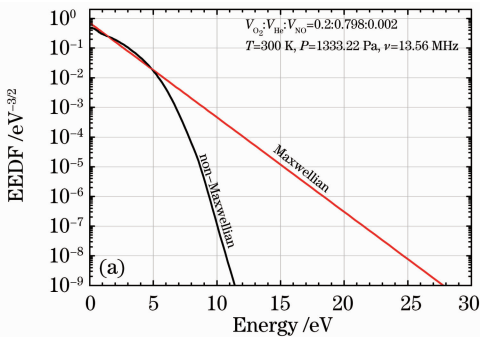


图 2 平均电子能量为 2.046 eV 时麦克斯韦型和非麦克斯韦型的电子能量分布函数 EEDF 的比较;(b)通过求解玻尔兹曼方程获得的 O_2 /He/NO 混合物在不同约化场强下的电子能量分布函数, 标注在曲线旁边的是约化场强数值

Fig. 2 (a) Maxwellian and non-Maxwellian electron energy distributions with the same mean electron energy of 2.046 eV; (b) electron energy distributions obtained by solving Boltzmann equation for O_2 /He/NO mixture at various electric fields, where labels near the curves are the corresponding reduced electric fields in Td

例减小了。图 2(b) 给出了在不同约化场强下与图 2(a) 相同体积比的混合物的电子能量分布函数, 从计算结果显然可以看出, 随着约化场强的增加, 平均电子能量逐渐增加, 高能电子所占的百分比也逐渐增加。另外, 从图 2(b) 中还可以看出, 在给定的约化场强范围内(5~40 Td), 电子能量分布函数均表现为显著的非麦克斯韦型分布, 这说明在较低的电场强度下不宜采用麦克斯韦型分布的电子能量分布函数假设。

在放电产生单重态氧的过程中, 为了提高产率, 通常还会加入一定量的 NO, 一般为 10^{-4} 量级(体积分数)。图 3 给出了 NO 添加物对电子能量分布函数的影响, 可以看到 NO 的添加量在 O_2 的 0.1% 以下时对电子能量分布函数的影响基本可以忽略。

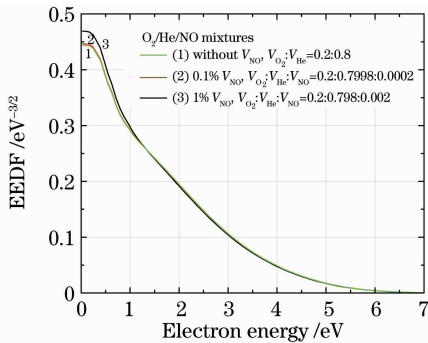


图 3 加入 NO 气体对氧气等离子体电子能量分布函数的影响

Fig. 3 Influence of nitric oxide additives on the electron energy distribution function for oxygen

3.2 电子平均能量

在很多时候, 氧气等离子体的化学反应速率常数、流体力学性质、能量利用效率等参数都直接与电子平均能量 $\bar{\epsilon}$ 有关而不是约化场强 E/N , 因此考察电子平均能量随放电参数的变化更为重要。

图 4 给出了不同载气、不同含量的氧气混合物在放电时的平均电子能量随着约化场强的变化关系, 很显然在同样的约化场强下纯氧放电的平均电子能量最低, 加入载气后平均电子能量增加了, 而且随着载气量的增加, 氧气含量降低, 平均电子能量也在逐渐增加。同样的约化场强下平均电子能量的提高意味着高能电子部分增加了, 更有利于放电击穿, 也即加入载气会更加有利于放电。

从图 4 中还可以看到, 同样氧气含量的 O_2/He 和 O_2/Ar 混合物, 其平均电子能量随着约化场强的变化曲线存在着一个交叉点; 以 O_2/He (氧气体积分数为 20%) 和 O_2/Ar 混合物为例, 当 E/N 较小时

O_2/Ar 的平均电子能量较高, 而当 E/N 较大时 O_2/He 的平均电子能量较高, 两条曲线交叉于 $E/N=65$ Td 处。这说明如果单纯从放电击穿的条件来看, 当放电电压及电场强度一定时, 低气压时 O_2/He 混合物有利, 而高气压时 O_2/Ar 混合物更为有利。

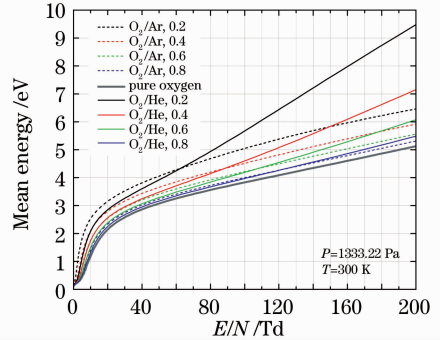


图 4 纯氧、 O_2/He 及 O_2/Ar 混合物放电等离子体的平均电子能量随约化场强的变化关系
Fig. 4 Mean electron energy as a function of reduced electric field for pure oxygen and the mixtures of O_2/He and O_2/Ar

在放电产生单重态氧的过程中, 加入 NO 有两个作用, 一方面它可以降低阈值击穿场强, 另一方面它也可以俘获氧原子, 从而降低氧原子对 $O_2(a^1\Delta)$ 的猝灭速率。需要分析哪一个因素更为重要。图 5 给出了添加 NO 对平均电子能量的影响, 当 NO 体积为 O_2 的 1% 时几乎看不到平均电子能量的变化, 也就是说达到同样的平均电子能量 $\bar{\epsilon}$ 所需要的约化场强 E/N 几乎没有变化, 这说明添加 NO 气体对击穿场强影响不大。因此, 在放电气体中引入 NO, 降低电离能进而降低约化场强 E/N 并不是提高单重态氧的主要因素。

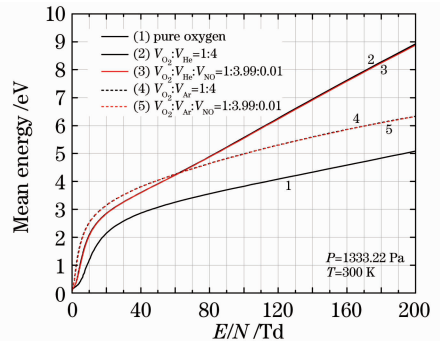


图 5 有无 NO 添加物对 O_2/He 及 O_2/Ar 混合物放电等离子体平均电子能量的影响
Fig. 5 Mean electron energy as a function of reduced electric field for oxygen and O_2/He , O_2/Ar mixtures with and without nitric oxide additives

氧碘激光器的储能粒子 $O_2(a^1\Delta)$ 是一种相对比较稳定的物种,其含量是比较高的,因此有必要了解 $O_2(a^1\Delta)$ 的存在对氧气放电等离子体参数的影响。图 6 给出了当氧气中含有 15% 的 $O_2(a^1\Delta)$ 时对平均电子能量的影响,计算结果显示有 $O_2(a^1\Delta)$ 存在时对平均电子能量有一定的影响,但并不显著。

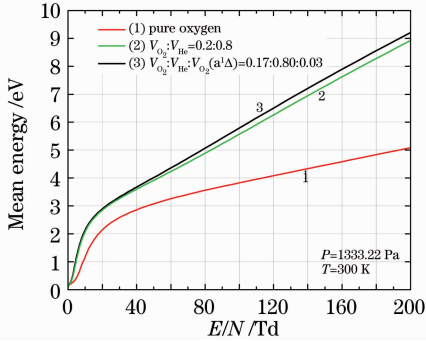


图 6 $O_2(a^1\Delta)$ 激发态的存在与否对 O_2/He 混合物放电等离子体平均电子能量的影响

Fig. 6 Mean electron energy as a function of reduced electric field for oxygen and O_2/He , $O_2/He-O_2(a^1\Delta)$ mixtures

3.3 电子能量利用效率

在氧气放电等离子体中,能量来自于电子和离子(主要是电子)通过电场加速获得的能量,然后电子又通过与各种粒子的碰撞将基态分子原子抽运到各种激发态,当能量较高时还会发生离解过程和离子化过程。当然,对于电激励氧碘激光器,最关心的是单重态氧 $O_2(a^1\Delta)$ 的产生过程 $e + O_2 \rightarrow e + O_2(a^1\Delta)$ 。将电子能量中用于抽运基态 $O_2(X)$ 到激发态 $O_2(a^1\Delta)$ 的那一部分能量占总能量的百分比定义为电子能量利用效率 $\eta_{O_2(a^1\Delta)} = P_{O_2(a^1\Delta)} / P_{total}$,有时也称为沉积到 $O_2(a^1\Delta)$ 中的能量分支比。

图 7 是电子能量利用效率 $\eta_{O_2(a^1\Delta)}$ 随约化场强 E/N 的变化关系曲线,图中给出了不同百分比的 O_2/He 混合物(实线)和 O_2/Ar 混合物(虚线)放电时的关系曲线。对于纯氧放电来说(氧气分支比 χ_{O_2} 为 1.0),用于激发 O_2 到 $O_2(a^1\Delta)$ 的能量最大可以达到 45%,所需要的约化场强在 9~11 Td 之间。对于 O_2/He 混合物放电(图中实线),随着氧气分支比 χ_{O_2} 的降低最佳约化场强 E/N 逐渐降低, $\chi_{O_2} = 0.1$ 时最佳 E/N 约为 5 Td;但是值得注意的是,随着 χ_{O_2} 的降低,用于激发 O_2 到 $O_2(a^1\Delta)$ 的最大能量也降低了, $\chi_{O_2} = 0.1$ 时最大只有约 26% 的能量用于激发 O_2 到 $O_2(a^1\Delta)$ 激发态。对于 O_2/Ar 混合物放电(图中虚线),随着氧气分支比 χ_{O_2} 的降低最佳约

化场强 E/N 也逐渐降低, $\chi_{O_2} = 0.1$ 时最佳 E/N 约为 3 Td;但与 O_2/He 混合物放电过程不同的是,随着 χ_{O_2} 的降低,用于激发 O_2 到 $O_2(a^1\Delta)$ 的最大能量不但不降低,反而还略有升高, $\chi_{O_2} = 0.1 \sim 0.3$ 时最大约有 51% 的能量用于激发 O_2 到 $O_2(a^1\Delta)$ 激发态。从图中还可以看到, $\chi_{O_2} = 0.2$ 时用于激发 O_2 到 $O_2(a^1\Delta)$ 的最大能量似乎达到了局部最大。 O_2 自持放电时的约化场强远远大于 10 Td,这表明如果想得到最大的能量利用效率[即将大多数能量用于抽运 O_2 到 $O_2(a^1\Delta)$],必须采用非自持放电方式。

从图 7 还可以看到,当 E/N 小于 10 Td 时,对于相同的氧气分支比来说,使用 O_2/Ar 混合物放电的能量利用效率远远大于 O_2/He 混合物放电。 $\chi_{O_2} = 0.1$ 时,3 Td 时 O_2/Ar 混合物放电的能量利用效率为 51%,而 O_2/He 混合物放电的能量利用效率只有 17%。而当 $E/N > 10$ Td 时,两种混合物放电时的能量利用效率快速接近,当 O_2 含量较高时这种接近程度更加明显。

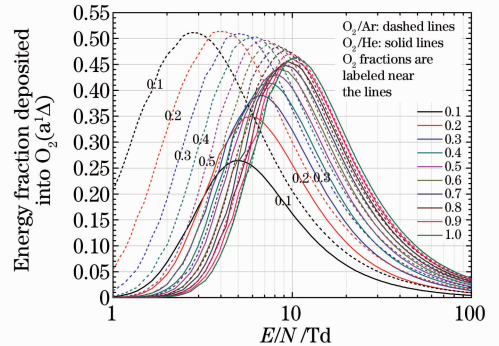


图 7 电子能量利用效率 $\eta_{O_2(a^1\Delta)}$ 随约化场强 E/N 的变化关系曲线,其中实线为 O_2/He 混合物,虚线代表 O_2/Ar 混合物

Fig. 7 Electron energy fractions deposited into $O_2(a^1\Delta)$ as functions of reduced electric field for various O_2/He mixtures (solid lines) and O_2/Ar mixtures (dashed lines)

图 8 为 O_2/He 和 O_2/Ar 两种混合物进行放电时的最大能量利用效率[即转化为 $O_2(a^1\Delta)$ 的能量占总能量的百分比]随着 O_2 含量的变化关系曲线。可以看到,对于 O_2/He 放电,能量利用效率随着氧气含量的增加而单调增加,而且斜率越来越小,说明增加速度越来越慢;而对于 O_2/Ar 放电,其能量利用效率随着氧气含量的增加而逐渐减少,注意到在 $\chi_{O_2} = 0.2$ 处出现了一个极大值点,这说明最合适的混合物组成可能是 $V(O_2):V(Ar) = 1:4$,在极大值点后几乎近似于线性减小,当然减少速度比较慢。

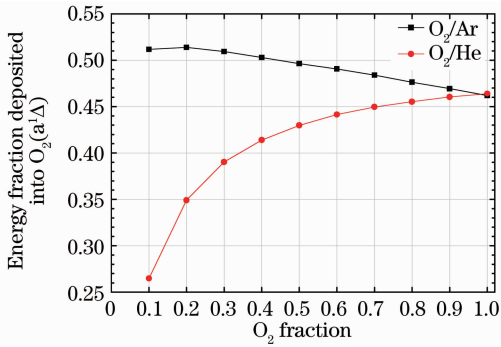


图8 O₂/He 和 O₂/Ar 混合物进行放电时的最大电子能量利用效率随 O₂ 含量的变化曲线

Fig. 8 Maximum electron energy fraction deposited into O₂ (a¹Δ) as a function of O₂ content for the discharge of O₂/He and O₂/Ar mixtures

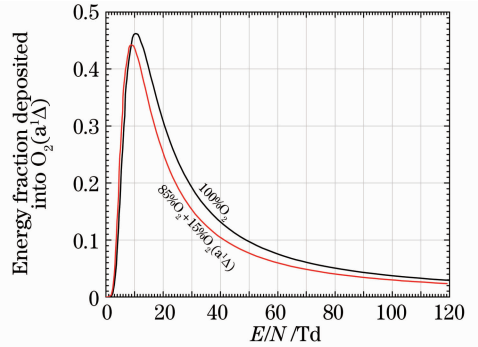


图9 纯氧放电和 O₂/O₂ (a¹Δ) 混合物放电时电子能量利用效率随约化场强的变化关系

Fig. 9 Electron energy fraction deposited into O₂ (a¹Δ) as a function of reduced electric field for the discharge of O₂ and O₂ + O₂ (a¹Δ)

图9给出了纯氧放电和 O₂/O₂ (a¹Δ) 混合物放电时电子能量利用效率随约化场强的变化关系。很显然,当包含有 15% 的 O₂ (a¹Δ) 时,氧气等离子体的电子能量利用效率最佳值所对应的约化场强有所减小;同时,最大的电子能量利用效率也有所减小。

图10所示为约化场强为 10, 50 Td 时电子平均能量和电子能量利用效率随放电频率的变化关系曲线。

由图10可以看到,在 1333.22 Pa 压力下,当放电频率从 5 MHz 变化到 500 MHz 时,电子平均能量变化不大,接近于一条水平直线,在此期间用于激发 O₂ (a¹Δ) 的能量百分比也接近于恒定水平;但是在 1~30 GHz 范围内,平均电子能量变化非常明显,而用于激发 O₂ (a¹Δ) 的能量百分比也开始大幅度变化。

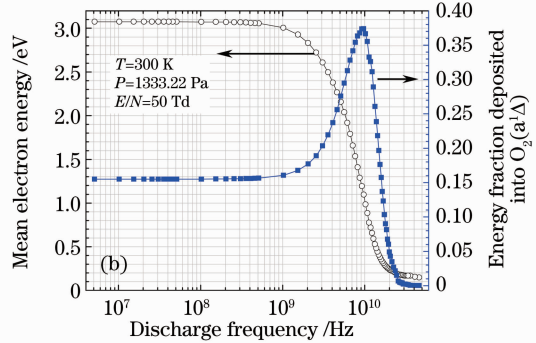
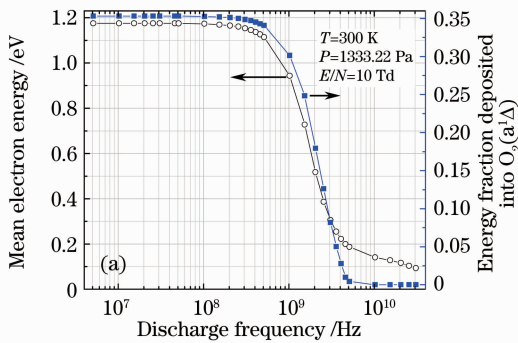


图10 约化场强分别为(a) 10 Td 和(b) 50 Td 时电子平均能量和电子能量利用效率随着放电频率的变化关系曲线

Fig. 10 Mean electron energy and electron energy fraction deposited into O₂ (a¹Δ) as functions of discharge frequency for the reduced electric field of (a) 10 Td and (b) 50 Td

从图10(a)和(b)都可以看到,随着放电频率的增加,平均电子能量一直在下降,10 Td 时从 1.2 eV 下降到 0.1 eV,而 50 Td 时则从 3.1 eV 下降到 0.1 eV。另外还注意到,图10(a)中能量利用效率一直在下降,最高值在最开始的一段范围内,即平均电子能量约为 1.2 eV 的时候;而图10(b)中能量利用效率则先上升再下降,注意到能量效率最大的地方其平均电子能量约为 1.1 eV,这与 10 Td 的最佳平均电子能量是接近的。这说明,平均电子能量是决定电子能量利用效率[进入 O₂ (a¹Δ) 的能量占总能量的百分比]的决定性因素。

4 结论

通过求解玻尔兹曼方程,得到了各种含氧混合物的电子能量分布函数、平均电子能量以及用于抽运 O₂ (a¹Δ) 的电子能量利用效率,考察了各种放电因素对产生单重态氧的影响。获得的电子能量分布函数呈现出典型的非麦克斯韦型分布,表明在较低电场强度下不宜采用麦克斯韦型分布的电子能量分布函数。

在同样的约化场强下纯氧放电的平均电子能量最低。同样氧气含量的 O₂/He 和 O₂/Ar 混合物,

其平均电子能量随着约化场强的变化曲线存在着一个交叉点, O_2 体积分数为 20% 时该交叉点位于 $E/N=65$ Td。添加 NO 气体对击穿场强影响不大, 因此在放电气体中引入 NO, 降低电离能进而降低约化场强 E/N 不是提高单重态氧产率的主要因素。当氧气中含有 15% 的 $O_2(a^1\Delta)$ 时对平均电子能量有一定的影响, 但并不显著。

平均电子能量随着放电频率的变化先是有有一个平台期, 基本保持不变, 然后从某个频率开始一直下降, 该转折频率与气体温度和气体压力有关。用于激发 $O_2(a^1\Delta)$ 的电子能量利用效率随着放电频率的变化在 E/N 不同时有所不同, 10 Td 时一直下降, 但 50 Td 时则呈现出先上升后下降的趋势, 存在着一个最佳放电频率, $T=300$ K、 $P=1333.22$ Pa 时的最佳放电频率为 10 GHz。

参 考 文 献

1 F. T. Sang, Y. Q. Jin, L. P. Duo. Chemical Lasers and Applications[M]. Beijing: Chemical Industry Press, 2006
桑凤亭, 金玉奇, 多丽萍. 化学激光器及其应用[M]. 北京: 化学工业出版社, 2006
2 M. C. Heaven. Recent advances in the development of discharge-

pumped oxygen-iodine lasers[J]. *Laser Photonics Rev.*, 2010, **4**(5): 671~683
3 D. L. Carroll, J. T. Verdeyen, D. M. King *et al.*. Measurement of positive gain on the 1315 nm transition of atomic iodine pumped by $O_2(a^1\Delta)$ produced in an electric discharge[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2004, **85**(8): 1320~1322
4 D. L. Carroll, J. T. Verdeyen, D. M. King *et al.*. Continuous-wave laser oscillation on the 1315 nm transition of atomic iodine pumped by $O_2(a^1\Delta)$ produced in an electric discharge[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2005, **86**(11): 111104
5 Duo Liping, Li Liucheng, Wang Zengqiang *et al.*. Recent development of electric oxygen-iodine laser [J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2008, **45**(11): 15~21
多丽萍, 李留成, 王增强 等. 电激励氧碘激光器研究最新进展[J]. *激光与光电子学进展*, 2008, **45**(11): 15~21
6 Duo Liping, Wang Zengqiang, Li Liucheng *et al.*. Experimental study of singlet delta oxygen produced by discharge[J]. *Chinese J. Lasers*, 2011, **38**(7): 0702003
多丽萍, 王增强, 李留成 等. 放电激励产生单重态氧的实验研究[J]. *中国激光*, 2011, **38**(7): 0702003
7 Duo Liping, Li Guofu, Yu Haijun *et al.*. Study of pulsed discharge of gases simulated in N_2 -chemical oxygen-iodine laser [J]. *Chinese J. Lasers*, 2009, **36**(9): 2315~2318
多丽萍, 李国富, 于海军 等. 模拟 N_2 -氧碘化学激光器混合气体脉冲放电实验研究[J]. *中国激光*, 2009, **36**(9): 2315~2318
8 T. Holstein. Energy distribution of electrons in high frequency gas discharge[J]. *Phys. Rev.*, 1946, **70**(5-6): 367~384
9 PHELPS Database[OL]. <http://www.lxcat.laplace.univ-tlse.fr>, retrieved May 18, 2011

栏目编辑: 宋梅梅