

用丁二酮激光诱导磷光测量流场 可能性的研究*

刘建邦 潘 崎 刘长胜 史杰荣

(中国科学院力学研究所)

摘要 对混合在氮气中丁二酮三重态 3A_u 的激光诱导磷光性质的实验结果表明,磷光寿命是温度的函数,与密度及浓度无关;而初始磷光强度是密度的线性函数,对温度变化不敏感。用观察氮气中少量丁二酮磷光寿命与磷光初始强度的方法可以测量流场的温度与密度分布。磷光寿命长的特点可以用来测量速度分布。它在很大程度上克服了多普勒测速中因固体微粒质量大而滞后于气流的问题,因而可以在具有高加速度的流场中使用。本文还对磷光衰减机理进行了分析,结果与实验一致。上述同时测温度与密度的方法尚未见诸文献报道。

关键词 流场测量、激光光谱学、丁二酮、光化学。

一、引言

用丁二酮 ($CH_3COCOCH_3$, 简称为 Ac_2) 激光诱导荧光与磷光特性测量流场密度与速度分布,是近年来国际上出现的一种新流场测量方法。1974年 A. H. Epstein^[1] 指出了丁二酮的磷光可以用来显示流线与测速。1977年他又用丁二酮的荧光进行了跨音速压气机转子的三维定量密度分布测量以分析叶片边界层三维特性及激波系等^[2]。1979年 R. L. McKenzie 等^[3]用丁二酮荧光实时地测量了紊流中密度涨落。1984年 B. Hiller 等^[4]用丁二酮的磷光显示了流场的二维速度分布。最近 F. Itoh 等^[5]用丁二酮的磷光完成了 0.5 torr 低密度流场的流速测量。

丁二酮的许多特性适合于流场测量。它具有较高的饱和蒸气压(室温下 40 torr),在 20 torr 以下没有明显的凝聚^[6],因此可以较方便地在气流中掺入足够密度的丁二酮。它的磷光量子产额很高(0.149^[4])因而信号较强。它的吸收谱在可见光区(3500—4700 Å)且为宽带状连续谱,因而比较容易获得适当的激发光源且对激发光的线宽要求不高。它无毒有味易燃,是食品工业中常用的一种添加剂。缺点是氧很容易使它的磷光猝灭,因而只能在不含氧的气流中使用。

我们对混合在氮气中的丁二酮的三重态 3A_u 的激光诱导磷光与温度、密度与浓度的关系进行了实验研究,对其磷光发光机理进行了分析并与实验结果作了比较,最后对其在流场测量中的应用前景进行了讨论。其中关于用丁二酮磷光寿命测温及用初始磷光强度测密度等方法尚未见诸文献报道。

* 国家自然科学基金与第三世界科学院资助项目。

本文于 1986 年 12 月 26 日收到,由解伯民编委推荐。

二、实验原理与装置

实验原理如图 1 所示. 用染料激光辐照氮与丁二酮的混合气体. 丁二酮基态 1A_g (以下略作 s_0 态) 分子吸收激光并跃迁到

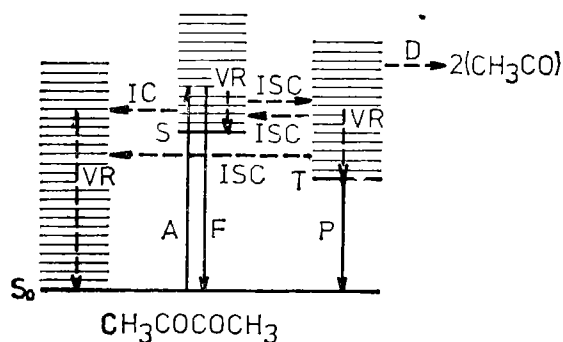


图 1 实验原理图

ISC 系间窜跃 F 荧光辐射 IC 内部转变 P 磷光辐射
VR 振动弛豫 s_0 基态 A 光吸收 s 单重激发态
D 离解 T 三重激发态

单重态 1A_u (以下略作 s 态), 少量的 s 分子 (2.5×10^{-3}) 经自发辐射回到基态并发出荧光, 寿命为 2.4×10^{-8} 秒^[9]. 绝大部份 s 分子 (~ 1) 在自旋—轨道耦合的微扰下无辐射地跃迁到三重态 3A_u (以下略作 T 态), 这称为系际交叉 (Intersystem crossing). T 态分子的一部份发出磷光回到基态, 其寿命在室温下为 1.52 毫秒^[9]. 三重态 T 有可能与杂质分子碰撞而猝灭, 但除氧等少数分子外, 大多

数杂质分子猝灭速率常被并不大. 如果激光功率密度很大, T 态分子浓度较高, T-T 态湮没过程^[9]会起较明显的作用, 这是我们不希望出现的, 应当尽量避免. 磷光与荧光寿命相差甚远, 波长也不一样, 实验中还是容易分开的.

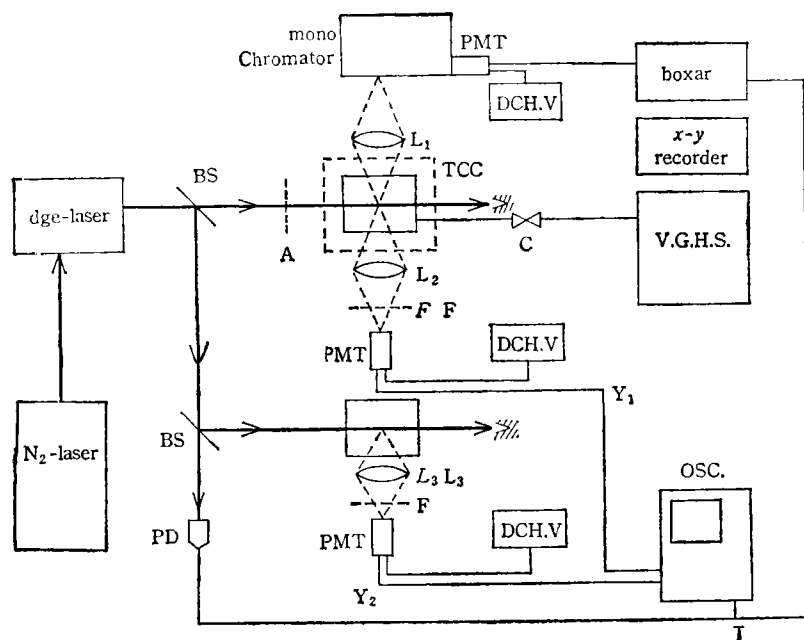


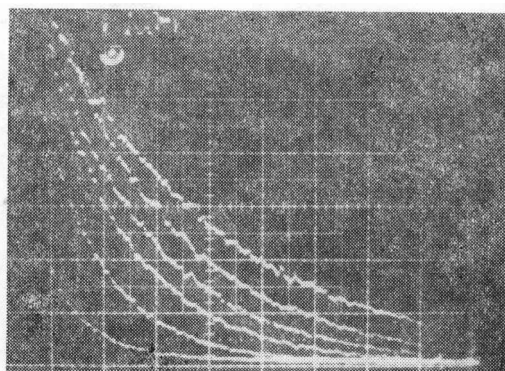
图 2 实验装置图

BS 分束器 DCH. V. 直流高压电源 PD 光二极管 V. G. H. S. 真空配气系统
A 中性衰减片 Y_1 样品信号 L_1, L_2 透镜 Y_2 参考信号 F 滤色片 T 同步信号
PMT 光电倍增管 C 真空阀门 TCC 温度控制室

实验装置如图 2 所示。用脉冲氮分子激光器 (波长 3371 \AA) 泵浦染料激光器产生单脉冲能量 0.5 mJ , 脉宽 15×10^{-9} 秒重复频率 3 Hz 的激光脉冲, 大部份实验选用激发波长为 4350 \AA (染料为 Coumarin 120)。样品合是真空密封玻璃合, 抽真空 (10^{-4} torr) 后充以适当比例的氮气 (钢瓶装高纯氮, 纯度为 99.999%) 及丁二酮蒸气, 丁二酮蒸气用经去气处理的丁二酮液体 (西德产) 在室温下蒸发得到。整个样品合置于一温度控制室内以保证温度的稳定与均匀。样品合入口处置一中性衰减片以降低 T-T 态湮没反应速率, 衰减系数的选择要保证在两倍寿命时间内磷光衰减曲线为单 e 指数形式。参考合用以监视脉光单脉冲能量的变化, 其输出与样品信号同时在示波器上显示并用以修正样品信号。样品合及参考合发出的磷光先经干涉滤色片 (4800 \AA 长波道) 滤去入射激光及荧光后用光电倍增管接收并在双通道记忆示波器上显示, 照相后用读数显微镜读数, 或用 Boxcar 处理后用 xy 记录仪记录。

三、实验结果

丁二酮的激光诱导磷光谱如图 3 所示, 为一从 $4900-5890 \text{ \AA}$ 连续分布的带状光谱。最高峰在 5175 \AA 附近, 另一不甚明显的峰在 5550 \AA 附近。此结果与 H. Okabe^[6] 实验结果相符。激光诱导磷光强度随时间与温度的变化如照片 1 所示, 为一组按 e 指数规律衰减的曲线。入射激光波长在 $4300-4400 \text{ \AA}$ 范围内变化时, 同时接收所有波长的磷光并对时间积分, 由此得到的磷光信号与入射激光强度之比值基本保持不变。用经标定的透射系数不同的中性衰减片改变入射光强, 磷光强度与入射激光强度呈很好的线性关系 (图 4)。这表明我们采用的激光强度还未达到饱和激光强度, 因此可以不考虑饱和效应的影响。我们较仔细地研究了在不同浓度与总压下初始磷光强度与密度及温度的关系。初始磷光强度是指在激光到达被测体积的瞬刻的磷光强度。但此时刻附近激光强度很高, 同



照片 1 磷光衰减曲线

丁二酮: 10.3 torr , N_2 : 203 torr
 自上而下各曲线相应温度是: $22, 65, 76, 86, 98, 110^\circ\text{C}$
 横坐标: 0.5 ms/div .

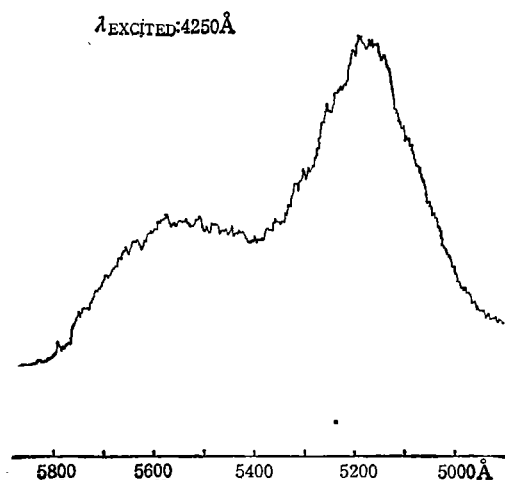


图 3 丁二酮激光诱导磷光谱

时还有荧光、电干扰及其它因素(见下文)的影响,测量结果的信噪比较低.但上述各种干扰在 $20 \mu\text{s}$ 之后基本消失,所以我们采用将 $20 \mu\text{s}$ 后的实验曲线线性外推至零时刻的办法求得初始磷光强度.由于衰减曲线是很好的单 e 指数形式,外推点又很接近零时刻($20 \mu\text{s}$ 仅是寿命的 1%),由外推引入的误差可以忽略.实验结果表明初始磷光强度对温度变化并不灵敏,在室温至 100°C 范围内线性减少 5%.初始磷光强度与密度*关系如图 6 所示,其中横坐标以每次实验中压力最高值为 1,纵坐标以最高压力相应的磷光初始强度为 1.图中每一实验点及其标准误差均由 14 组参数不同的实验结果处理得到,这些参数变化范围是:温度为 $26-80^\circ\text{C}$,总压为 $13-700 \text{ torr}$,丁二酮分压是 $0.02-40 \text{ torr}$,丁二酮分压与总压之比为 $0.001-0.06$.由图 6 可以看出,相对初始磷光强度与相对压力呈线

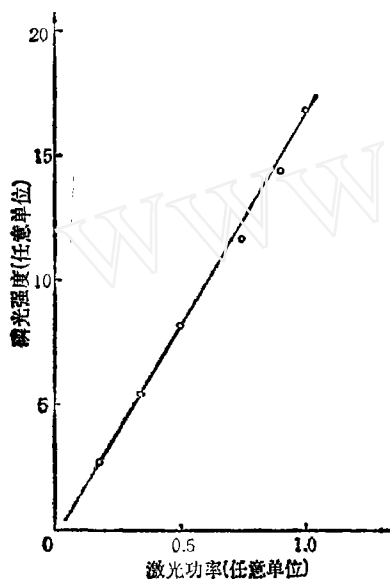


图 4 丁二酮磷光强度与人射激光、强度关系

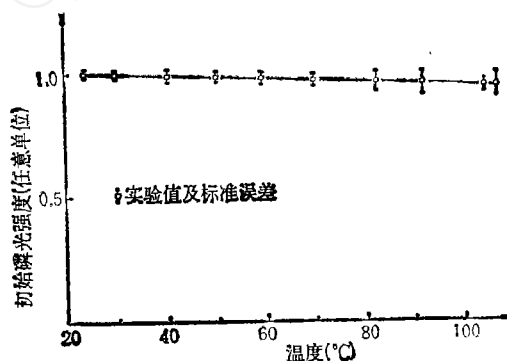


图 5 丁二酮初始磷光强度与温度关系

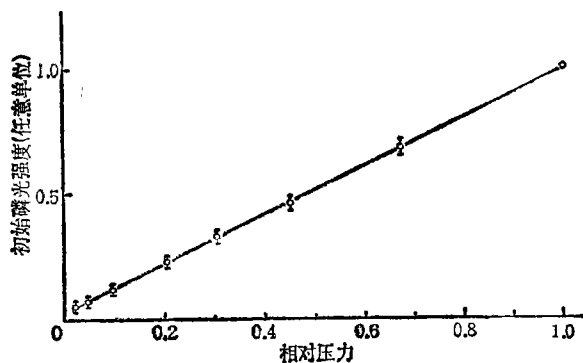


图 6 丁二酮初始磷光强度与密度关系(见正文注*)

* 为方便起见,本文中用室温下的压力数据代替密度数据.

性关系. 在室温至 90℃ 范围内, 磷光衰减曲线呈很好的单 e 指数形式 (图 7). 在 90℃ 以上, 随着温度的增加, 非线性关系越来越明显. 图 8 为磷光寿命 τ_T 与绝对温度 T 的关系, 经验公式是

$$\tau_T = (586 + 3.40 \times 10^8 e^{\frac{-4.76 \times 10^7}{T}})^{-1} \text{ 秒.}$$

此公式由 14 组参数不同的实验数据用最小二乘法得到, 这些参量变化范围是: 温度为 18—90℃, 压力(室温)为 75—555 torr, 丁二酮分压(室温)为 0.68—40 torr, 丁二酮分压与总压之比为 0.001—0.30. 图 8 实验结果表明, 磷光寿命是温度的函数, 与密度及浓度无关.

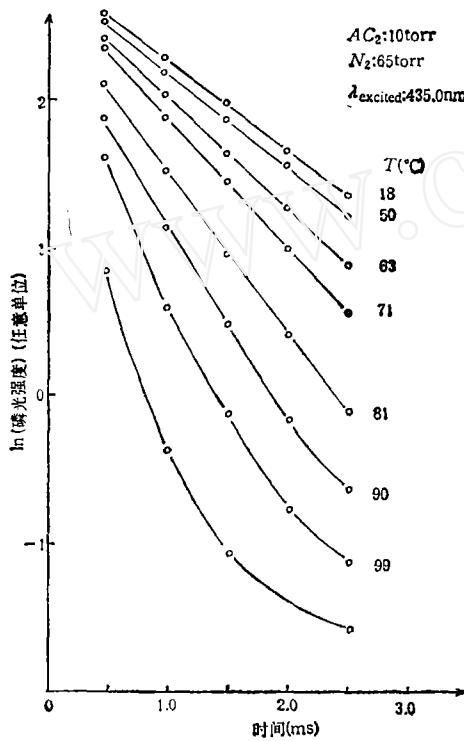


图 7 丁二酮磷光对数衰减曲线

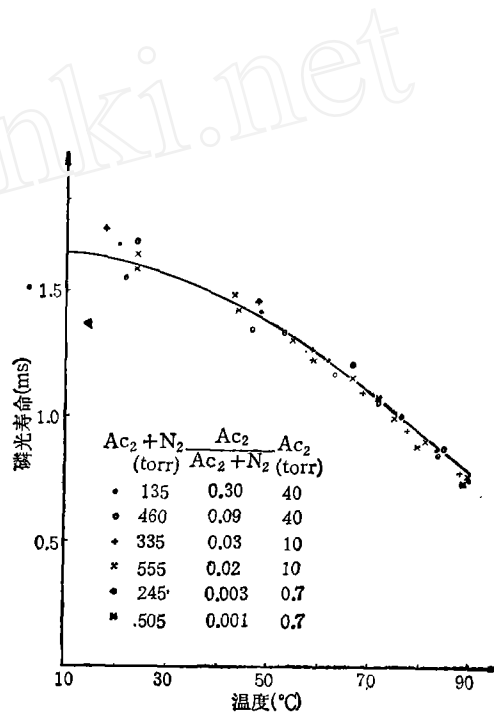


图 8 丁二酮三重态 (3Au) 寿命与温度关系

四、磷光衰减机理分析

整个发光过程可用单重态分子数密度 N_s 与三重态分子数密度 N_T 的速率方程 (1) (2) 表示

$$\frac{dN_s}{dt} = N_s B(\lambda) G W(\lambda, x, y, z, t) - N_s K_s + N_T K_{T_s} \quad (1)$$

$$\frac{dN_T}{dt} = N_s K_{sT} - N_T K_T \quad (2)$$

其中

$$K_s = K_{sF} + K_{sS_0} + K_{sT} \quad (3)$$

$$K_T = K_{Tp} + K_{TD} + K_{Ts_0} + K_{Ts}, \quad (4)$$

N_{s_0} 是基态的分子数密度, $B(\lambda)$ 是 $s_0 \rightarrow s$ 吸收系数, $W(\lambda, x, y, z, t)$ 是波长为 λ 的激光在空间某点 (x, y, z) 及时刻 t 的能量密度, G 为中性衰减片透射系数, K_{sF} 、 K_{ss_0} 、 K_{sT} 、 K_{Tp} 、 K_{TD} 、 K_{Ts_0} 、 K_{Ts} 分别为荧光、分子内部过程、 $s \rightarrow T$ 系际交叉、磷光、热离解 ($\text{CH}_3\text{COCOCH}_3 \rightarrow 2(\text{CH}_3\text{CO})$)、 $T \rightarrow s_0$ 系际交叉及 $T \rightarrow s$ 系际交叉过程的速率常数。由(3)、(4)可得

$$\begin{aligned} & \frac{d^2 N_T}{dt^2} + (K_s + K_T) \frac{dN_T}{dt} + (K_s K_T - K_{sT} K_{Ts}) N_T \\ & = K_{sT} N_{s_0} B(\lambda) G W(\lambda, x, y, z, t), \end{aligned} \quad (5)$$

相应的齐次方程特征根为

$$\gamma_T = \frac{1}{2} [-(K_s + K_T) + \sqrt{(K_s - K_T)^2 + 4K_{sT}K_{Ts}}] \quad (6)$$

$$\gamma_s = \frac{1}{2} [-(K_s + K_T) - \sqrt{(K_s - K_T)^2 + 4K_{sT}K_{Ts}}]. \quad (7)$$

初始条件为

$$N_T(0) = 0 \quad (8)$$

$$N_s(0) = 0 \quad (9)$$

通解为

$$N_T(t) = \int_0^t \frac{e^{\gamma_T(t-s)} - e^{\gamma_s(t-s)}}{\gamma_T - \gamma_s} K_{sT} N_{s_0} B(\lambda) G W(\lambda, x, y, z, s) ds \quad (10)$$

$$N_s(t) = \int_0^t \frac{(\gamma_T + K_T)e^{\gamma_T(t-s)} - (\gamma_s + K_T)e^{\gamma_s(t-s)}}{\gamma_T - \gamma_s} N_{s_0} B(\lambda) G W(\lambda, x, y, z, s) ds \quad (11)$$

(10)、(11)与(6)、(7)为方程(5)的严格解。以下结合丁二酮与本实验中的具体情况,对上述解作以下近似,以简化公式并易于直接与实验结果比较。

1. 本实验中 t 约为 10^{-3} 秒而激发光脉冲 $W(\lambda, x, y, z, t)$ 宽度仅 1.5×10^{-8} 秒,故相对于 t 来说 $W(\lambda, x, y, z, t)$ 的行为近似于一个中心在 $t = s_M$ 处的 δ 函数^[14]

$$W(\lambda, x, y, z, t) \cong \left(\int_{-\infty}^{+\infty} W(\lambda, x, y, z, s) ds \right) \delta(t - s_M). \quad (12)$$

2. 由文献[7]的实验结果可知 $K_s \cong K_{sT} = 10^7 - 10^8$ 秒⁻¹, $K_T \cong K_{Ts}$, $K_{sT}/K_{Ts} \cong 10^2 - 10^3$, 故有 $K_s \cong K_{sT} \gg K_T \cong K_{Ts}$, 用此关系得

$$\gamma_T \cong -K_T + \frac{K_{sT}K_{Ts}}{K_s - K_T} \cong -\left(K_{Tp} + K_{TD} + K_{Ts_0} + \frac{K_{sF} + K_{ss_0}}{K_s} K_{Ts} \right) \quad (13)$$

$$\gamma_s \cong -K_s - \frac{K_{sT}K_{Ts}}{K_s - K_T} \cong -K_s \quad (14)$$

$$\gamma_T - \gamma_s \cong K_s. \quad (15)$$

用以上近似可得

$$N_T(t) = (e^{\gamma_T t} - e^{\gamma_s t}) \frac{K_{sT}}{K_s} N_{s_0} B(\lambda) G \int_{-\infty}^{+\infty} W(\lambda, x, y, z, s) ds \quad (16)$$

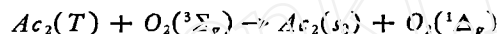
$$N_s(t) = \left(\frac{K_{sT}K_{Ts}}{K_s^2} e^{\gamma_T t} + e^{\gamma_s t} \right) N_{s_0} B(\lambda) G \int_{-\infty}^{+\infty} W(\lambda, x, y, z, s) ds, \quad (17)$$

其中 $\gamma_T \sim 10^3 \text{ 秒}^{-1}$, $\gamma_s \sim 10^8 \text{ 秒}^{-1}$. 我们仅对毫秒量级的(例如在室温与 100 torr 气压下碰撞频率约为 10^9 次/秒), 玻尔兹曼分布是可以使用的. (18) 式中还用丁二酮分子数密度 N 近似地代替了 (16) 式中的 N_{s_0} , 因为丁二酮最低电子激发态距基态 $2 \times 10^{-4} \text{ cm}^{-1}$ ^[7], 而室温下 $kT \cong 2 \times 10^3 \text{ cm}^{-1}$, 基本上所有的分子都处在基态, 所以近似 $N \cong N_s$ 是足够精确的.

以下我们把理论公式(18)、(19)与实验结果作一比较:

1. 由 (18)、(19) 磷光强度按 e 指数形式衰减且其寿命是温度的函数但与密度无关. 这与文献[5]、[9]及本文实验结果一致.

2. 磷光初始强度由 (18) 式中 $e^{\tau t}$ 项前系数决定. 不难看出, 磷光初始强度与密度 N 及中性衰减片透射系数 G 成正比, 这与本文实验结果一致. 按 (18) 式磷光初始强度原则上是温度的函数, 但本文与文献[9]的实验结果表明, 在室温至 100°C 的范围内磷光初始强度随温度变化很缓慢. 氧的猝灭作用是通过反应



实现的. 氧的 $^1\Delta_g$ 激发能 (23 KCal/mol)^[11] 远小于丁二酮现象感兴趣, 如上所述, 我们用 $t = 20 \mu\text{s}$ 后的实验数据外推至零时刻的办法消除 $e^{\tau t}$ 项及其它因素对零时刻 $e^{\tau t}$ 项的影响. 此外考虑到上述各速率常数应是各振动能级上相应速率常数的统计平均值, 仪器接收到的磷光信号强度是

$$I_{ph}(t) = \left(D \frac{\int_0^\infty \rho(E_{TV}) e^{-\frac{E_{TV}}{kT}} h\nu(E_{TV}) K_{Tp}(E_{TV}) dE_{TV}}{\int_0^\infty \rho(E_{TV}) e^{-\frac{E_{TV}}{kT}} dE_{TV}} \times \frac{\int_0^\infty \rho(E_{sV}) e^{-\frac{E_{sV}}{kT}} K_{sT}(E_{sV}) dE_{sV}}{\int_0^\infty \rho(E_{sV}) e^{-\frac{E_{sV}}{kT}} K_{sI}(E_{sV}) dE_{sV}} \right. \\ \left. \times NG \int_{-\infty}^{+\infty} \int_V \int_0^\infty B(\lambda) W(\lambda, x, y, z, s) dx dy dz ds \right) e^{\tau t}. \quad (18)$$

三重态 T 的磷光寿命 τ_T 可以表为

$$\tau_T = \frac{-1}{\gamma_T} \\ = \left\{ \left(\int_0^\infty \rho(E_{TV}) e^{-\frac{E_{TV}}{kT}} \left[K_{Tp}(E_{TV}) + K_{TD}(E_{TV}) + K_{Ts_0}(E_{TV}) \right. \right. \right. \\ \left. \left. \left. + \frac{\int_0^\infty \rho(E_{sV}) e^{-\frac{E_{sV}}{kT}} (K_{sT}(E_{sV}) + K_{s_0}(E_{sV})) dE_{sV}}{\int_0^\infty \rho(E_{TV}) e^{-\frac{E_{TV}}{kT}} dE_{TV}} K_{Ts}(E_{TV}) \right] dE_{TV} \right) \right\}^{-1}. \quad (19)$$

其中 D 为与仪器结构有关的系数, V 是被测体积, $h\nu(E_{TV})$ 是磷光光子能量. E_{sV} 与 E_{TV} 分别是 s 态与 T 态的振动能. 以上我们假定了 s 态与 T 态都处在振动平衡状态, 因此使用了玻尔兹曼分布, 这就要求分子间通过碰撞交换能量的速率远大于我们考虑的其它过程速率. 实际上只要气压不太低, 分子间相互碰撞是足够频繁的酮最低电子态的激发能

(56 Kcal/mol)^[10] 是上述反应能迅速进行的原因之一。氮分子最低激发态 ($A^3\Sigma_u^+$) 的激发能为 142 Kcal/mol^[11], 因而氮不易使磷光猝灭。氮分子在本实验中基本是“惰性”的, 它除了能增加分子碰撞频率从而使振动能级上分子数分布更接近玻尔兹曼分布外没有其它明显的作用。所以本文实验结果都与氮的浓度无关。

五、关于用丁二酮激光诱导磷光测量流场可能性的讨论

1. 温度测量: 利用丁二酮三重态磷光寿命仅是温度的函数而与密度及浓度无关的特点, 可以测量气流温度。

2. 密度测量: 利用丁二酮三重态磷光初始强度与密度成线性关系并对温度不敏感的特性, 我们可以用在氮气中掺入少量一定浓度的丁二酮并测量它的磷光初始强度的方法, 按图 6 确定气流密度。在测温范围较大或精度要求较高时可再按图 5 用已测定的温度值对所得密度值作修正。

3. 速度测量: 丁二酮磷光寿命较长, 如果气流速度为 1000 米/秒, 则在磷光寿命时间内发光气体位置将移动 1.52 米, 因此有可能用测量发光点流经两个已知位置所需时间的方法来测量流速。实际测量时可用探测器阵列或在探测器前加明暗相间的透射光栅的方法。我们已对后一种方法进行了试验并得到了预期的速度信号, 详细结果将另文发表。由于使用分子状态的丁二酮作为发光物质, 与使用固体微粒作为散射源的多普勒测速法相比, 它在很大程度上克服了多普勒测速所固有的在流速变化时固体微粒滞后于气流的问题, 因而可以在具有高加速度的流场如高速离心机、涡轮发动机、强激波前后及边界层附近使用。

4. 低密度流场测量: 上述密度、温度与速度场的测量都是基于对丁二酮磷光信号的探测。由于丁二酮磷光量子产额高、吸收谱带宽、磷光信号是比较强的。本实验中测量的最低压力为 13 torr, 其中丁二酮分压仅 0.02 torr, 磷光探测并不很困难。应当指出, 我们使用的激光光源与光电倍增管都还有许多改进的余地, 如果进一步采取措施, 估计十兆以下的低密度流场测量是有可能进行的。最近, F. Itoh^[13] 的实验证实用了丁二酮磷光对高达 0.5 torr 低密度流场进行流速测量是可行的。

5. 三维空间测量问题: 本方法采用激光为光源, 若将激光束用柱透镜聚成平面状并采用二维探测器阵列, 在适当的条件下可以同时测激光平面上多个点作密度与温度测量。若改变激光平面位置则可以得到三维的密度与温度分布。至于速度测量, 可以用聚得较细的激光束在垂直于速度方向激发丁二酮, 从而得到在激光束与流束方向所在平面上的速度分布。

6. 如果各方面条件合适, 本方法原则上可以从同一信号中测出密度、温度与速度三个参量。

7. 使用限制与缺点

1) 由于测量磷光寿命需要约 1—2 ms 的时间, 在此时间内, 发光气体不应发生密度与温度变化, 所以在密度与温度空间分布不甚均匀的流场中, 测温只能对流速较低的气流进行, 但密度与速度测量并不受此限制。

2) 如上所述, 氧气对丁二酮磷光有强烈的猝灭作用, 故测量只能在与氧气隔绝的环

境中进行。我们的实验表明,用钢瓶装高纯氮及可以达到 10^{-4} torr 真空度的实验系统已基本满足要求。

作者感谢解伯民教授的建设性意见并感谢夏生杰、白双萼及夏陆华同志的大力协助。

作者感谢国家自然科学基金委员会和第三世界科学院 (TWAS) 对本研究项目的支持。

参 考 文 献

- [1] Epstein, A. H., MIT GTL Report No. 117(1974).
- [2] Epstein, A. H., *J. Eng. Power*, 99(1977), 460.
- [3] McKenzie, R. L. et al., NASA Report No. 791088(1979).
- [4] Collier, S. S. et al., *Photochem. Photobiol.* 7(1968), 737.
- [5] Sidebottom, H. W. et al., *J. A. C. S.* 94, No. 1(1972), 13.
- [6] Okabe, H. et al., *J. Am. Chem. Soc.* 79(1957), 801.
- [7] R. Van der Werf, et al., *Chem. Phys.* 18(1976), 125.
- [8] Moss, A. Z. et al., *J. Chem. Phys.* 61(1974), 2883.
- [9] Gonchevskinn, C. O. et al., *J. Photochem.* 13(1980), 55.
- [10] Barltrop, J. A. and Coyle, J. D. *Principle of Photochemistry* (1978).
- [11] Turro, N. J. *Modern Molecular Photochemistry* The Benjamin/Cummings Publishing Co., Inc. (1978).
- [12] Calvert, J. G. and Pitts, J. N. Jr., *Photochemistry*, John Wiley & Sons, Inc. (1966).
- [13] Itoh, F. et al., *Vac. Sci. Technol.* B3(1985), 1600.
- [14] 周世勋, 量子力学, 上海科学技术出版社 (1961).
- [15] Stedman, D. D. et al., *J. A. C. S.* 90(1968), 6857.

INVESTIGATION OF POSSIBILITY OF FLOWFIELD DIAGNOSTICS BY LASER INDUCED BIACETYL PHOSPHORESCENCE

Liu Jianbang, Pan Qi, Liu Changsheng, Shi Jierong

(Institute of Mechanics, Chinese Academy of Sciences)

Abstract The experimental results of laser induced Biacetyl 3A_n state phosphorescence in a mixture of Biacetyl and N_2 show that the phosphorescence life time is a function of temperature and independent of density and concentration; the initial phosphorescence intensity is a linear function of density and insensitive to temperature. The density and temperature distribution of flowfield might be measured by observing the initial intensity and life time of Biacetyl phosphorescence in a mixture of Biacetyl and N_2 respectively. The long life time of phosphorescence can be used for the velocity measurement. Comparing with the Doppler anemometry, the complexity caused by the lag of seed particles is eased to a great extent with this method, so it might be applied in flowfield with higher velocity gradient. The phosphorescence mechanism is discussed and the results are agree with experiment.

Key words Flow field diagnostics, Laser spectroscopy, Biacetyl, Photochemistry.