以液体作氯施主的 XeCl 激光器

张大可 张正线 傳淑芬 陈建文 (中国科学院上海光机所)

提要:本文报道以 CCl₄ 和 SiCl₄ 作氯施主的 XeCl 激光器的实验结果以及 H₂ 对输出特性的影响,输出能量可达以 HCl 为氯施主的 80%。讨论了该体系的形成动力学。

XeCl excimer laser using liquid as chlorine donor

Zhang Dake, Zhang Zhengxian, Fu Shufen, Chen Jianwen (Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Academia Sinica)

Abstract: This paper reports the experimental results of a XeCl laser using CCl_4 or $SiCl_4$ as chlorine donor and the effect of H_2 on the output performance. The formation kinetics of these system is discussed for the first time. The maximum output energy is as much as 80% of that using HCl as chlorine donor.

一、引言

迄今已报道用作快放电型 XeCl 准分子 激光器氯施主的化合物有: Cl₂^[12]、CF₈Cl、 C₂F₃Cl、CCl₂F₂、CCl₄、HCl^[23]、BCl₃^[33]、SiCl₄^[43]等。尽管许多文献报道了采用液态氯化物作 氯施主,但很少涉及到 XeCl 的形成动力学。 本实验采用 CCl₄、SiCl₄ 作氯施主,在 CCl₄(SiCl₄)/Xe/Ne 体系中引入 H₂,并研究了上述体系中的形成动力学。

二、实验装置

采用 Blumlein 快放电电路和火花隙紫外预电离。用环氧筒制成的放电室长 100 厘

米,内径为8厘米。一对长80厘米的铜制电极用螺栓从外部固定在筒壁上,并直接与平板电容相联接。电极之间的间距为2厘米,激活区体积约为160厘米3。预电离火花板由不锈钢制成,共两排,每排有31个间距1毫米的空隙,为了避免表面放电,火花板做成倒凸字型。火花板所在平面与电极平面正交。放电室前后两端分别装有反射率为8%的石英平镜和镀膜全反(3080Å)平镜,构成封闭式谐振腔。

用 AC15/3 直流辐射检流计测量激光输出能量,接收炭斗的口径为16毫米。由于高功率 XeCl 激光器对腔镜的严重损坏,我们将激光输出能量始终限制在100毫焦耳以下,所以文中作图一律采用相对单位。

收稿日期: 1983年8月12日。

三、实验结果

首先测量了以 HCl 作为氯施主时的 激光输出能量。在气体混合比为: HCl:Xe:Ne=3.5托:25托:1472托, 预电离电压为 31千伏,主放电电压为 20千伏的条件下,测得最大输出能量为 72毫焦耳。

然后以 CCl₄ 为氯施主,测量激光输出能量。实验分以下两个步骤:第一,保持 CCl₄、Xe 和 Ne 的气分比不变,逐次改变 H₂ 的气压,观察输出能量的变化,图 1 给出了变化曲线。第二,保持 H₂、Xe 和 Ne 的气分比不变,逐次改变 CCl₄ 的气压,观察输出能量的变化,图 2 给出了在相同的激励条件下测得的变化曲线。

根据上述两次测量结果,我们在最佳气体混合比条件下,测量了输出能量随激励电

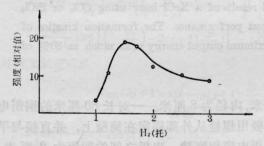


图 1 激光输出能量随 H₂ 密度的变化 CCl₄:Xe:Ne=15:20:2×750 托; 预电离电 压 28 千伏; 主放电电压 28 千伏

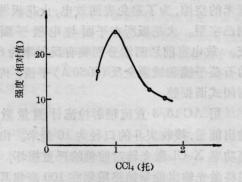


图 2 激光输出能量随 CCl₄ 密度的变化 H₂: Xe: Ne=2.0:20:2×750 托 预电离电压 28 千伏; 主放电电压 28 千伏

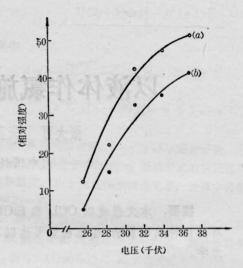


图 3 激光输出能量随激励电压的变化 COl₄:H₂:Xe:Ne=1.0:2.0:20:2×750 托 (a) 预电离电压为 28 千伏; (b) 预电离电压为 25 千伏

压的变化,其结果见图 3。

在以 SiCl₄ 为氯施主时的实验步骤与COl₄ 相同,但有两点稍异:一是激励条件不同,原因是如果保持与COl₄ 相同的激励条件,则在大多数情况下无激光输出;二是混合气体中Xe 的比例不同,这是因为我们发现在一定范围内,Xe 的密度对激光输出能量的影响不大。

图 4 给出当 SiCl₄、Xe 和 Ne 的密度保持恒定时,激光输出能量随 H₂ 密度变化的曲线。图 5 则给出能量随 SiCl₄ 密度变化的曲线。

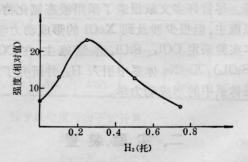


图 4 激光输出能量随 H₂ 密度的变化 SiCl₄: Xe: Ne=0.5:7.0:2×750 托 预电离电压 31 千伏; 主放电电压 17 千伏

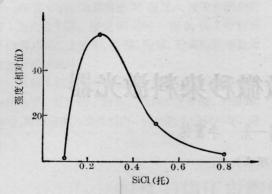


图 5 激光输出能量随 SiCl4 密度的变化

当气体混合比为: SiCl₄:H₂:Xe:Ne=0.25 托:0.5 托:7 托:1492 托, 预电离电压为31 千伏, 主放电电压为28 千伏时, 测得最大输出能量约为 HCl 的 0.8 倍。

四、讨 论

在实验中观察到,在以 HCl 作为氯施主时,从第一次放电开始即有激光输出,并在最初几个脉冲之后,其输出能量即达到最大值。当以 CCl₄ 作为氯施主时,在开始放电的一段时间内并无激射现象。如果混合气体中含有 H₂,一般在放电 100 次左右就有比较稳定的输出,如果不含有 H₂,则要在约 1000 次放电之后,才会有稳定的激光辐射,且其能量远小于含有 H₂ 时的激光输出。这一结果表明H₂ 在形成准分子 XeCl* 的过程中起了重要的作用。这一反应过程可以表示为^[5].

$$H_2+e \longrightarrow H^{\bullet}+H+e$$
 $CCl_4+H^{\bullet} \longrightarrow HCl+CCl_3^{\bullet}$
 $Xe^*+HCl \xrightarrow{k_1} XeCl^*+H$
("•"表示基)

而不含 出。时,其化学反应过程很可能是:

$$\operatorname{CCl_4} + e \longrightarrow \operatorname{Cl^-} + \operatorname{CCl_3}^{\bullet}$$
 $\operatorname{Xe^+} + \operatorname{Cl^-} + \operatorname{M} \stackrel{k_2}{\longrightarrow} \operatorname{XeCl^*} + \operatorname{M}$

由于反应速率 k₁ 远大于 k₂, 这就说明为什么在含有 H₂ 时可以较快地形成稳定的激射, 并且可以获得较高的激光输出能量。文

献[4]认为在以 CCl₄ 作为氯施主时,主要是通过水化反应(hydrolysis)产生 HCl, 然后再形成 XeCl*,亦即:

 $CCl_4+H_2O+h\nu\longrightarrow 2HCl+Cl_2+CO$ 由于我们在每次充气之前都保证了放电室内有较高的真空度(一般达到 4×10^{-2} 毫米水银柱),所以这一反应过程发生的可能性是比较小的,特别是同 H_2 的还原反应相比更是如此。

在以 SiCl₄ 作为氯施主时所观察到的现象与 CCl₄ 的相类似,但达到稳定的激光输出所需的时间更长。在含有 H₂ 时,一般至少需要放电 200 次左右才开始有激射,在大约 500 个脉冲之后,输出方始趋于稳定。在不含有 H₂ 时还要等到 1000 多次放电之后,才会有比较稳定的激光输出,其能量不仅小于含 H₂ 时的输出能量,也比以 CCl₄ 为氯施主时的能量小。

实际上, SiCl₄ 的化学活动性远大于CCl₄。如果将液态的SiCl₄ 暴露在空气中,立刻就会形成浓度很高的酸雾,这就是水化反应:

SiCl₄+3H₂O → 4HCl+Si(OH)₂ 而对于液态的 CCl₄,则无此种现象发生。 因此,如果在以 CCl₄ 或 SiCl₄ 作为氯施主时,主要是通过水化反应形成 XeCl*的话,那么,在采用 SiCl₄ 时应比采用 CCl₄ 更快地获得稳定的激光输出,而且,在不含有 H₂ 时,前者的输出能量也必然大于后者,而不是相反。为了更清楚地说明问题,我们还在 SiCl₄ 蒸气中掺入浓度为 95% 的乙醇蒸气,结果所获得的输出能量极低(见表 1)。这样,就进一步排除了以水化反应作为主要反应过程的可能性。 基于这样的实验事实,我们认为在以SiCl₄ 为氯施主时,其主要的反应通道仍然是 H₂ 的还原反应:

 $SiCl_4+2H_2 \longrightarrow HCl+Si$ $Xe^*+HCl \longrightarrow XeCl^*+H$ (下转第 406 页)

发射型的 CH₃F 496 微米跃迁, 其效果尤为明显; 对于受激喇曼发射型的 D₂O 66 微米和 385 微米跃迁, 亦有类似的效应。

参考文献

- [1] D. T. Hodges; Infrared Phys., 1978, 18, No. 5~
 6, 375.
- [2] T. A. Detemple; "Pulsed optically pumped far infrared lasers", in "Infrared and Millimeter Waves Vol. 1, Sources of Radiation", Edited by K. J. Button, Chapter 3(1979).
- [3] K. Lipton et al.; Opt. Commun., 1979, 21, No. 1, 42.
- [4] P. Mathien et al.; IEEE J. Quant. Electr., 1977, QE-13, No. 6, 465.
- [5] P. Woskoboinikow et al.; J. Appl. Phys., 1979, 50, No. 2, 1125.

- [6] A. Semet et al.; International Journal of Infrared and Mollimeter Waves, 1983, 4, No. 2 231.
- [7] M. R. Green et al.; J. Phys. D: Appl. Phys., 1980,13, No. 6, 1029.
- [8] T. Y. Chang; JOSA, 1976, 66, No. 4, 362.
- [9] 潘承志等; 《光学学报》, 1983, 3, No. 5, 404.
- [10] D. E. Evans et al.; Opt. Commun., 1976, 18, No. 4, 479.
- [11] E. Armandillo et al.; Infrared Phys., 1979, 19, 273.
- [12] 潘承志等;《电子科学》, 1983, No. 3, 13.
- [13] 潘承志等;《电子报学》,(待发表)。
- [14] T. Y. Chang; IEEE J. Quant. Electr., 1977, QE-13, No. 12, 937.
- [15] E. Armandillo et al.; J. Phys. D: Appl. Phys., 1978, 11, No. 4, 421.

表1 输出能量表*

| 氯化物 | 添加物 | 气 分 比 | 输出能量(毫焦耳) |
|-------------------|--|---|-----------|
| HCl | | HCl:Xe:Ne=3.5:25:1472(托) | 72 |
| CCl ₄ | 在林 ···· | CCl ₄ :Xe:Ne=1.0:20:1479(托) | 8 |
| CCl ₄ | H_2 | CCl ₄ :H ₂ :Xe:Ne=1.0:2.0:20:1477(托) | 52.4 |
| SiCl ₄ | C. C | SiCl ₄ :Xe:Ne=0.25:7:1493(托) | 7.33 |
| SiCl ₄ | H_2 | SiCl ₄ :H ₂ :Xe:Ne=0.25:0.5:7:1492(托) | 57.3 |
| SiCl ₄ | CH ₂ OH | SiCl ₄ :OH ₂ OH:Xe:Ne=0.25:0.25:7:1492(托) | 0.67 |
| CHCl ₃ | 844 Ale - 185 - 1 | CHCl ₃ :Xe:Ne=1.0:7.0:1492(托) | 4.67 |
| CHCl ₃ | H_2 | CHCl ₃ :H ₂ :Xe:Ne=0.5:0.5:7:1492(托) | 7.33 |

^{*} 输出能量未计入因透镜的反射等引起的损耗。

实验结束时,在放电室内发现有残留的白色粉末状硅,更证实了我们的推测。

此外,还以 CHCl₃ 作为氯施主进行了实验,总的结果见表 1。

上述实验结果表明: 1. 当混合气体中含有 H2 时,达到稳定输出的时间远小于不含 H2 的情况。这是因为在均匀放电条件下,H2 首先分解成氢原子团 H*, 然后与 CCl4 或 SiCl4 有机合成 HCl,并生成 XeCl*; 2. 以较为廉价、较易获得的 CCl4 或 SiCl4 等含氯化合物加 H2 取代 HCl 作为 XeCl 准分子激光器的氯施主是完全可行的,尽管其输出能

量略有降低。此外它也提供了以相同的化学 反应机理形成其他准分子体系的可能性,人 们可以用液态化合物作为氯施主或 溴 施 主, 去开拓 KrCl、XeBr 等新的领域。

参考文献

- [1] J. J. Ewing et al.; Appl. Phys. Lett., 1975, 27, 355.
- [2] R. Burnham; Opt. Commun., 1978, 24, 161.
- [3] К. А. Кудревцев; *Кван. электр.*, 1977, **4**, 231.
- [4] R. Salimbeni et al.; Opt. Commun., 1981, 39, 75
- [5] Д. Н. Андреев; "Органический синтез в электрических разрядах", Издательство АН СССР, 1953.