

在 XeCl 雪崩放电激光器中预电离电子的衰减过程

郑承恩

罗荫权

(中国科学院上海光机所)

(美国加州大学圣地亚哥分校)

提要: 计算与实验表明, 典型混合气体 HCl/Xe/Ne 的 XeCl 激光器中, 在预电离阶段, 电子与 HCl 的分解粘附反应不是电子损耗的主要过程; 电子密度衰减很慢。这可能与电子的三体复合有关。

Preionization electron decay process in XeCl avalanche discharge lasers

Zheng Chengen

(Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Academia Sinica, Shanghai)

Dennis Lo

(University of California, San Diego, USA)

Abstract: Both calculation and experiment shows that the dissociation attachment of electrons and HCl is not the major channel for electron loss in XeCl lasers with typical gas mixture of HCl/Xe/Ne. The slow decay of electron density may be involved with the three-body combination of electrons.

一、序 言

预电离技术是获得高压均匀电子雪崩放电的关键技术之一, 并已在电子雪崩放电泵浦的高气压准分子激光器中获得成功的应用。实验发现, 在 XeF 与 KrF 激光器中, 尽管 F₂ 对电子有极大的粘附速率, 紫外光预电离的效果仍可延续 10~20 μs 的时间。也就是说即便在预电离过程结束 20 μs 之后加上主放电场, 仍旧可以观察到预电离对放电均匀性的改进效果。为解释此现象, Hsia 描述了一个预电离的模型^[1]。按照此模型, 预电

离电子一旦产生后, 即在 ~10 ns 内与 F₂ 发生分解粘附反应, 形成氟原子的负离子 F⁻。由于 F⁻ 的寿命相当长, 在把主放电场加到放电电极的初始时刻, F⁻ 从电场中获得足够的动能, 以至于在与其它原子碰撞时得以解离而释出电子, 这些电子即形成了发生均匀电子雪崩放电所必须的初始电子密度分布。

在 XeCl 激光器中, 人们通常应用 Ne 作稀释气体。在氦气中, 氯的负离子 Cl⁻ 在电场中迁移率大约是 F⁻ 在 He 中的三倍

收稿日期: 1985年11月4日。

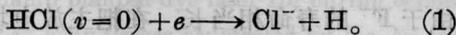
收到修改稿日期: 1986年4月28日。

多^[2,3],而对典型的 XeCl 气体雪崩放电放电场强度的测量结果表明,脉冲击穿场强一般小于 5 kV/cm·atm。按照这些数据,简单估算可以知道^[1],能够在场中漂移获得充分的能量并通过碰撞使自己发生解离的 Cl⁻ 离子数密度过于少,远远低于维持均匀雪崩放电所必须的最小初始电子密度 ~10⁶ 个/cm³^[4]。

通过上述分析可以看出,为了解释 XeCl 激光器中主放电脉冲与预电离脉冲之间的时间延迟对于激光放电特性的某些效应,需要进一步对于预电离过程作一些实验与理论探索。

二、简单的预电离模型

我们处理的 XeCl 激光器是使用 HCl/Xe/Ne 混合气体的情况。为简化问题,首先假定脉冲预电离源瞬态在气体中产生了均匀预电离电子密度分布 n_e^0 , 然后考虑在未加主放电电场的情况下,初始的电子密度 n_e^0 以怎样的规律在气体中衰减。在典型的预电离过程中,通常引起的预电离电子密度 $n_e^0 \leq 10^9$ 个/cm³,因此电子与离子的两体复合过程很慢。例如, n_e^0 从 10⁷ 个/cm³ 降到 10⁶ 个/cm³,即使对复合系数很大的 $e + Xe_2^+$ 与 $e + Ne_2^+$ 复合过程^[5,6],也需 ~10⁻¹ s 的数量级。故本文以后略去两体复合过程的影响,即只考虑下述反应过程的影响:



因为预电离过程中预电离电子密度很低 ($\leq 10^9$ /cm³),故电子激发产生的 HCl 振动激发态密度极低,因此反应(1)中只计入 HCl 基振动态对电子的粘附效应。简单估计表明,这种近似尚好。

分析上述反应的截面数据可以知道,当电子能量 ~0.8 eV 时,电子与 HCl 的分解粘附反应截面峰值 ~10⁻¹⁷ cm²,低于 0.8 eV 时,截面数值随电子能量减小而迅速地单调下降,在电子能量 ~0.5 eV 时,截面数值比

上述峰值数值小两个数量级以上。因此可以设想得到,预电离电子一旦产生后,由于在气体中发生的各种弹性或非弹性碰撞过程,电子能量不断减小,同时电子密度也不断减少。

为了求出反应(1)的反应速率,必须知道电子的能量分布。精确求解这个问题相当复杂。本文假定所有预电离电子的能量服从波尔兹曼分布,然后应用反应(1)的截面 $\sigma(\epsilon)$,算得上述反应的速率常数 β 为

$$\beta = \int_0^\infty \sigma(\epsilon) \sqrt{\frac{2\epsilon}{m_e}} \cdot f(\epsilon) d\epsilon. \quad (2)$$

计算结果示于图 1。显见在电子温度较小的区域 ($KT_e < 0.4$ eV),电子的粘附速率 β 随电子温度的减小而急剧降低。

由于预电离电子平均能量比较小,一般说低于几个 eV*, 故在考虑电子与中性原子碰撞过程中,只计入电子与原子的弹性碰撞过程。进一步我们假定电子与原子各自遵守波尔兹曼分布,由此可以按照 Cravath 的方法^[8]写出平均电子能量 $\bar{\epsilon} = \frac{3}{2} KT_e$ 的损耗速率方程,即

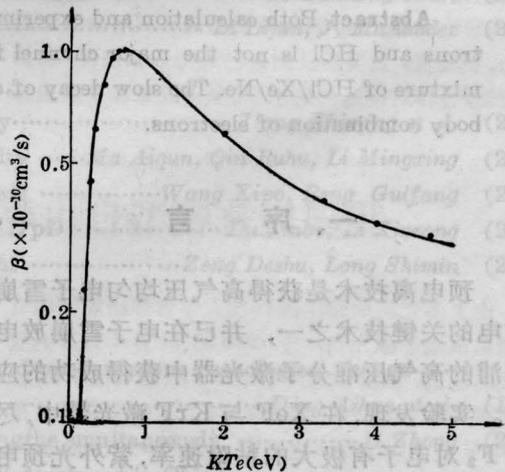


图 1 电子粘附速率 β 随电子温度的变化

* 作者尚未见诸于有关预电离气体平均电子能量的测量结果的报道,但是根据[7],用 10⁴ eV 的强流电子束直接泵浦高压 Ar 的数值结果表明,其平均电子能量约 2~3 eV。显然在一般预电离气体中,预电离电子平均能量不会大于这个数值。

$$-\frac{\partial}{\partial t} \left(\frac{3}{2} KT_e \right) = \frac{3}{2} KT_e \cdot \eta \cdot \bar{\nu}, \quad (3)$$

式中 η 是电子在与原子每次弹性碰撞中失去的能量 $\Delta \varepsilon$ 同其平均能量 $\bar{\varepsilon} = \frac{3}{2} KT_e$ 之比值。按照 Cravath 的结果^[9,10], η 可以写为

$$\eta = \frac{8}{3} \frac{m_e M}{(m_e + M)^2} \left(1 - \frac{T}{T_e} \right) \approx \frac{8}{3} \frac{m_e}{M} \left(1 - \frac{T}{T_e} \right), \quad (4)$$

式中 m_e 及 M 分别是电子与中性原子的质量; T_e 和 T 分别是电子与中性原子的温度; 式 (3) 中 $\bar{\nu}$ 是电子与中性原子的平均碰撞速率, 可写为

$$\bar{\nu} = \int_0^{\infty} f(\varepsilon) \nu(\varepsilon) d\varepsilon, \quad (5)$$

式中 $\nu(\varepsilon)$ 具有下列形式,

$$\nu(\varepsilon) = \sqrt{\frac{2\varepsilon}{m_e}} Q_m(\varepsilon) N_n, \quad (6)$$

式中 N_n 是原子数密度。本文研究 XeCl 激光器时, 通常 95% 以上的混合气体体积中是稀释气体氖, 故取 N_n 是 Ne 原子数密度是很好的近似。同样取 $Q_m(\varepsilon)$ 是电子在 Ne 中的动量转移截面。根据文献 [11, 12] 的数据, 我们可近似地把 16eV 以内截面数值近似表示为

$$Q_m(\varepsilon) = h(g + \sqrt{\varepsilon}), \quad (7)$$

式中系数 $h = 0.73 \cdot 10^{-16} \text{cm}^2 / \sqrt{\text{eV}}$; $g = 0.55 \sqrt{\text{eV}}$; 式中 ε 的单位是 eV。在 $\varepsilon > 16 \text{eV}$ 时, $Q_m(\varepsilon)$ 随 ε 增加而单调下降, 同时式 (5) 中被积函数内存在随 ε 增加而指数衰减的因子 $f(\varepsilon)$, 故 $\varepsilon > 16 \text{eV}$ 的电子与中性粒子的动量转移过程对 $\bar{\nu}$ 贡献甚小。由此可直接从式 (7) 所表示的 Q_m 以及式 (5) 与 (6) 求出 $\bar{\nu}$ 为

$$\bar{\nu} = \frac{3\sqrt{2}}{2} \frac{hN_n}{\sqrt{m_e}} \left(KT_e + \frac{4g}{3\sqrt{\pi}} \sqrt{KT_e} \right). \quad (8)$$

把上式代入方程 (3), 化简后得到下列形式,

$$-\frac{\partial}{\partial t} (KT_e) = \frac{4\sqrt{2} \sqrt{m_e} h}{M} N_n (KT_e - KT)$$

$$\times \left(KT_e + \frac{4g}{3\sqrt{\pi}} \sqrt{KT_e} \right). \quad (9)$$

可以求出上述方程解为下列形式 (见附录),

$$\begin{aligned} & \left(\frac{\sqrt{KT_e} - \sqrt{KT}}{\sqrt{KT_e^0} - \sqrt{KT}} \right) \\ & \times \left(\frac{\sqrt{KT_e} + \sqrt{KT}}{\sqrt{KT_e^0} + \sqrt{KT}} \right)^{\frac{\sqrt{KT} + \frac{4}{3} \frac{g}{\sqrt{\pi}}}{\sqrt{KT} - \frac{4}{3} \frac{g}{\sqrt{\pi}}}} \\ & \times \left(\frac{\sqrt{KT_e} + \frac{4}{3} \frac{g}{\sqrt{\pi}}}{\sqrt{KT_e^0} + \frac{4}{3} \frac{g}{\sqrt{\pi}}} \right)^{\frac{2(KT + \frac{4}{3} \frac{g}{\sqrt{\pi}} \sqrt{KT})}{\frac{16g^2}{9\pi} - KT}} \\ & = e^{-\frac{t}{\tau}}, \end{aligned} \quad (10)$$

式中

$$\tau = \frac{\sqrt{2}}{8} \cdot \frac{M}{h\sqrt{m_e} N_n} \times \frac{1}{\left(KT + \frac{4}{3} \frac{g}{\sqrt{\pi}} \sqrt{KT} \right)}. \quad (11)$$

图 2 给出初始电子温度 $KT_e^0 = 2 \text{eV}$ 时, 对应于几种不同的氖气压的电子温度随时间的变化关系。对于高于 5 个大气压气体来说, 电子在 $\sim 50 \text{ns}$ 内便可从初始的 $KT_e^0 = 2 \text{eV}$ 冷却到 $\sim 0.2 \text{eV}$ 以下。

根据图 1 与图 2 的数据可以算出电子粘附速率 β 随时间的变化。图 3 给出当气体为

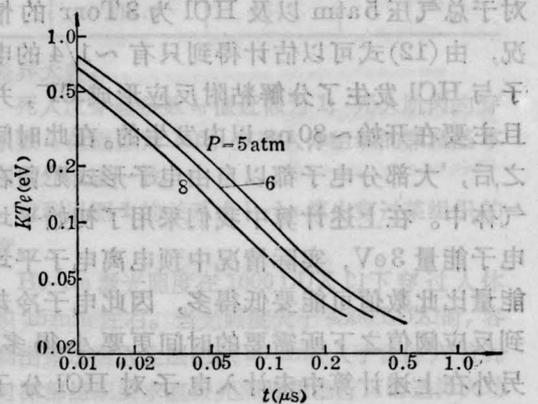


图 2 电子温度随时间的变化
初始电子温度 $KT_e^0 = 2 \text{eV}$; 参变量 P 分别为 5、6、8 atm

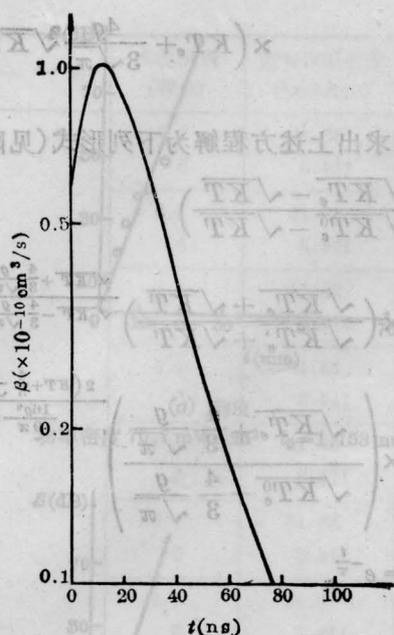


图3 粘附速率 β 随时间的变化

$KT_e^0 = 2\text{eV}$, $P = 5\text{atm}$

5个气压时 β 随时间的变化。显然当时间 $t > 20\text{ns}$ 后, β 随 t 增加急剧减小。

预电离电子密度经过时间 t 之后的数值可以粗略按下式估计:

$$\frac{n_e(t)}{n_e^0} \approx \exp\left[-N_{\text{HCl}} \int_0^t \beta(t') dt'\right]. \quad (12)$$

式中 N_{HCl} 是HCl分子的粒子数密度。由于在某一时刻之后 β 随时间增加而急剧减小,故在上式被积函数中对积分主要贡献只发生在一定的时间范围之内,一般说 $\sim 100\text{ns}$ 。对于总气压 5atm 以及HCl为 3Torr 的情况,由(12)式可以估计得到只有 $\sim 1/4$ 的电子与HCl发生了分解粘附反应形成 Cl^- ,并且主要是在开始 $\sim 80\text{ns}$ 以内发生的。在此时间之后,大部分电子都以自由电子形式贮留在气体中。在上述计算中我们采用了初始平均电子能量 3eV ,实际情况中预电离电子平均能量比此数值可能要低得多,因此电子冷却到反应阈值之下所需要的时间更要小得多;另外在上述计算中未计入电子对HCl分子的振动激发过程。若计入这个过程,有可能进一步加速电子的冷却过程,使参加分解粘

附反应形成 Cl^- 的电子数目更少。朱声白根据对波尔兹曼微分积分方程求解的计算机编码^[33],并考虑了有关动力学过程,计算结果表明,电子只在 $\sim 30\text{ns}$ 以内便冷却到平均电子能量 0.4eV 以下,其间约有 $1/5$ 的电子参与反应并形成 Cl^- 。由此可见,虽然本文为简化计算作了一些假定,但仍旧得到与计算机计算在数量级上相同的结果。按照上述图象我们可以很容易想到把 n_e^0 近似表示为下式,

$$n_e^0 \approx (1-\gamma) \int_0^{\Delta t} S(t) dt \approx (1-\gamma) S \Delta t, \quad (12)$$

式中 $S(t)$ 为单位时间单位体积中预电离源在气体中产生的电子数目,式(12)最后一步假定 S 与时间无关; Δt 是预电离源运转的时间长度;系数 γ 是电子在冷却过程中发生分解粘附反应的几率,根据前述估算, $\gamma \ll 1$ 。在式(12)中,假定了 $\Delta t \geq$ 电子的典型冷却时间,正如前边计算指出,典型冷却时间是几十ns。因 $\gamma \ll 1$,式(12)可近似写为

$$n_e^0 \approx S \cdot \Delta t.$$

三、实验

1. 观察两种不同的X射线预电离脉冲宽度对电子崩放电均匀性的影响。主放电能源是由8根阻抗 100Ω 的电缆并联而成,每根电缆长 20m ;电缆组合的总电容量 8nF 。在电缆组合与放电室电极之间有一个电极刀刃-平面型的轨道开关,对电缆组合充电是由一个 $0.02\mu\text{F}$ 的电容通过一个闸流管放电完成的。

预电离的X射线源是由冷阴极电子束轰击钨箔产生的^[35],改变二极管放电电容可引起X射线脉宽的变化,在图4给出了二极管两种电容量预电离效果的比较^[34]。图中每个实验点表示相应于所示气压,在适当地调整X射线预电离脉冲与主放电脉冲的延

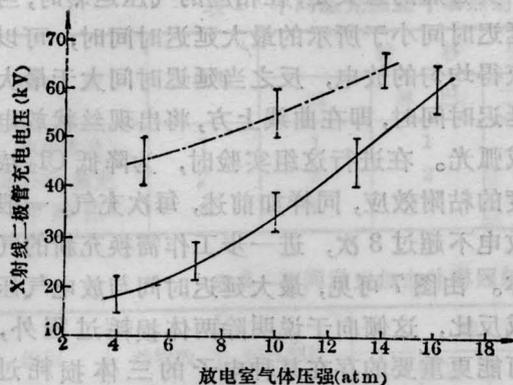


图4 为保证均匀放电所需要的 X 射线二极管的最小电压随放电室气压的变化
HCl 3 Torr, Xe 40 Torr, 其余为 Ne; 主放电电压 30 kV; X 射线脉冲宽度 0.1 μs (点划线)、0.6 μs (实线)

迟时间后, 为获得均匀放电所需要施加的最小 X 射线二极管电压, 放电均匀性是用两种方法判断的: 其一是通过紫外与中性滤光片用视觉直接观察放电区的亮度分布; 其二是应用滤光片 (Oriel 5786) 与 ITT 4000 强流光二极管以及 Tektronix 519 示波器测量 XeCl B → X 自发辐射的峰值强度。上述两种观察测量判断都是通过熔石英的窗口沿光轴进行的。整个实验维持相同的主放电充电电压 30 kV。在相同的 X 射线二极管电压与相同的主放电电压条件下, X 射线二极管放电容量较大的预电离源产生较多的预电离电子密度, 更为有效地造成均匀放电。例如当 X 射线二极管充电电压低于 40 kV 时, 在 5 atm 条件下, 用二极管放电电容 3 nF 的预电离源不能达到均匀放电; 用二极管放电电容为 20 nF 的预电离源, 只需要 ~20 kV 以上的充电电压即可造成均匀放电的条件。较小二极管放电电容的预电离源在上述条件下之所以不能达到均匀放电, 主要是因为在这种较短的 X 射线脉冲时间内, 不足以产生造成均匀放电所必须的最小预电离电子密度 ~10⁶/cm³ 所致^[4]。

2. 测量了 XeCl B-X 荧光强度对延迟

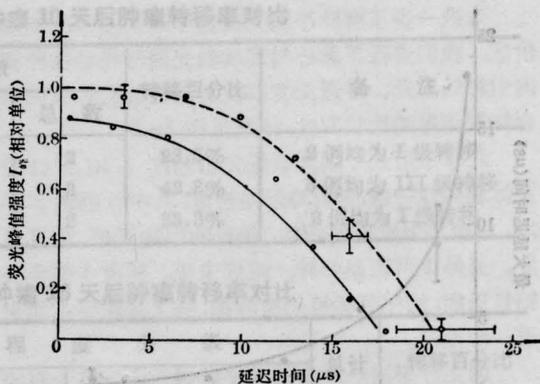


图5 峰值荧光强度 (XeCl B-X) 与延迟时间的关系

X 射线二极管充电电压 58 kV; 主放电电压 30 kV; Xe 63 Torr, Ne 5 atm; ○ HCl 3 Torr, ● HCl 11 Torr

时间的关系, 结果示于图 5^[14]。这里延迟时间是指在 X 射线二极管放电电压峰值与 B-X 荧光脉冲开始之间的时间。实验是用两台延迟触发器触发 X 射线二极管放电电压以及主放电电缆组合的充电电压。通过改变延迟触发器输出脉冲信号的時刻, 可获得不同的延迟时间。荧光强度是用强流光二极管 (F 4000) 与 519 示波器接收, 并在不同的条件下使用不同的中性衰减片与电信号衰减器。由图 5 显见, 两组曲线有几乎相同的趋势。虽然两组曲线相应的混合气体中 HCl 绝对含量差不多相差 4 倍, 但荧光强度都在 ~20 μs 的延迟时间降低到接近噪声水平。这说明在延迟期间, HCl 的分解粘附过程不是电子的主要损耗过程。

我们称图 5 中曲线所对应的延迟时间的最大值为最大延迟时间, 进一步增加延迟时间 (即大于最大延迟时间) 会使气体中出现丝状放电或弧光。实验中发现, 最大延迟时间随放电次数的增加而迅速减小。图 6 给出在本文所述小型放电室条件下所测得的最大延迟时间随放电次数的关系。实验中每隔 5 s 放电一次。显见仅仅 10 几次后, 最大延迟时间降为几个微秒。最大延迟时间随放电次数增加而减小的效应很可能由于 HCl 被放电

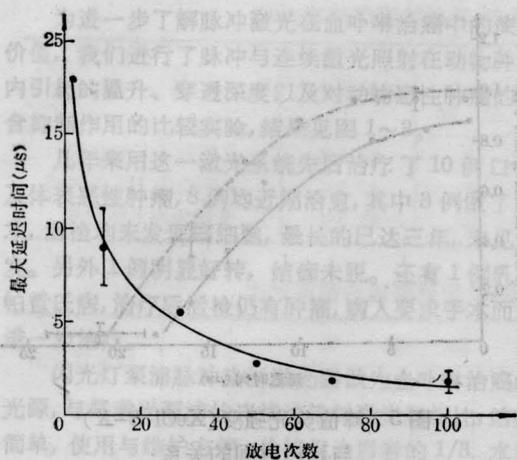


图6 最大延迟时间与放电次数的关系
HCl 4 Torr, Xe 50 Torr, Ne 5 atm

分解并形成 Cl_2 所致。

四、其它电子损耗过程

上述理论分析与实验结果表明,在混合气体为 HCl/Xe/Ne 典型的 XeCl 激光器中,在预电离阶段电子与离子的两体复合以及电子与 HCl 的分解粘附过程不是主要的电子密度损耗过程。可是最大延迟寿命的存在,毕竟说明存在其它电子损耗过程。为了研究这种过程的特点,我们测量了最大延迟时间随气压的变化,这些结果示于图 7^[14]。图中每

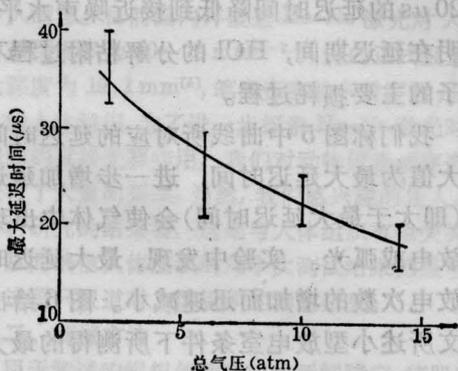
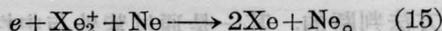
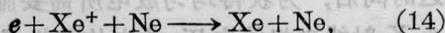


图7 最大延迟时间(辉光→弧光)与总气压的函数关系

X 射线二极管电压 50 kV; 主放电充电电压 25 kV; HCl/Xe=2 Torr/30 Torr

个实验点的意义是,在相应的气压运转时,当延迟时间小于所示的最大延迟时间时,可以获得均匀的放电,反之当延迟时间大于最大延迟时间时,即在曲线上方,将出现丝状放电或弧光。在进行这组实验时,为降低 Cl_2 浓度的粘附效应,同样如前述,每次充气,一般放电不超过 3 次,进一步工作需换充新的气体。由图 7 可见,最大延迟时间与放电气压成反比,这倾向于说明除两体损耗过程外,可能更重要的存在某种电子的三体损耗过程。

文献[16]指出,预电离电子密度的损耗可能归因于杂质气体 Cl_2 与电子的三体分解粘附过程,但在我们的实验中,下述反应存在很大的可能性,



虽然尚无上述反应速率的测量报道,但如同文献[17]对反应 $e + \text{He}^+ + \text{He}$ 或 $e + \text{He}_2^+ + \text{He}$ 所解释的那样,这些反应很可能通过形成中间反应产物 Ne_2^* 或 Ne_3^* 而使反应速率大大地加快。通过进一步精确的动力学计算,林绍基教授提出并分析了若干其它电子损耗过程^[18]。这一切都表明,通过研究预电离期间电子的损耗过程,可能在某种程度上揭示出低能电子 ($\sim 0.1\text{eV}$ 甚至更低,接近室温电子温度)同某些气体粒子的反应规律。

作者对加州大学圣地亚哥分校林绍基教授在工作期间所给予的若干建设性评述与指点深致谢意。

附 录

作变换 $T_0 = x^2$, 方程(8)可化为

$$\frac{\partial x}{\partial t} = -\frac{1}{2}A(x^2 - T_0) \cdot (x + B),$$

$$\text{式中} \quad A = \frac{4\sqrt{2}\sqrt{m_0}}{M} hKN_n,$$

$$B = \frac{4g}{3\sqrt{\pi K}}$$

进一步化为

$$-\frac{1}{2} A \cdot \frac{\partial t}{\partial x} = \frac{1}{(x^2 - T)(x + B)},$$

或

$$-\frac{1}{2} A \frac{\partial t}{\partial x} = \frac{a}{x + \sqrt{T_g}} + \frac{b}{x - \sqrt{T_g}} + \frac{c}{B + x},$$

式中

$$a = \frac{1}{2\sqrt{T}(\sqrt{T} - B)},$$

$$b = \frac{1}{2\sqrt{T}(\sqrt{T} + B)},$$

$$c = \frac{1}{B^2 - T}.$$

直接在上方程两边对 x 积分可以得到文中的解。

参 考 文 献

[1] J. Hsia, *Appl. Phys. Lett.*, 1977, **30**, 101.
 [2] I. Dotan *et al.*; *J. Chem. Phys.*, 1977, **66**, 2232.
 [3] C. E. Zheng; *Acta Optica Sinica*, 1983, **3**, 525.
 [4] J. I. Levatter, S. C. Lin; *J. Appl. Phys.*, 1980, **51**, 210.
 [5] Y. J. Shiu, M A Biondi, *Phys. Rev.*, 1977, **A 16**, 1817.
 [6] L. Frommhold *et al.*; *Phys. Rev.*, 1968, **165**, 44.

[7] C. J. Elliot, A. E. Greene; *J. Appl. Phys.*, 1979, **47**, 2946.
 [8] J. M. Meek, J. D. Craggs; "Electrical Breakdown of Gases", Oxford at the Clarendon Press, 1953, Chapter 10, p. 415.
 [9] A. M. Cravath; *Phys. Rev.*, 1930, **36**, 284.
 [10] E. M. McDaniel; "Collision Phenomena in Ionized Gases", John Wiley & Sons, Inc., New York, 1964, p. 22.
 [11] C. R. Hoffmann, H. M. Skarsgard; *Phys. Rev.*, 1969, **178**, 168.
 [12] S. C. Brown; "Basic Data of Plasma Physics", John Wiley & Sons, Inc., New York, 1959, p.31
 [13] S. B. Zhu, Ph. D. Dissertation, University of California, San Diego, 1984.
 [14] C. E. Zheng *et al.*; Presented at the 7th International Conference on Lasers and Applications, San Francisco, California, U. S. A., November, 1984, p. 26
 [15] J. I. Levatter, Z. G. Li; *Rev. Sci. Instrum.*, 1981, **52**, 1651.
 [16] H. Shields *et al.*; *Appl. Phys.*, 1983, **B31**, 27.
 [17] D. R. Bates; "The Physics of Ionized Gases" (R. K. Janev, ed.), Institute of Physics, Belgrade, Yugoslavia, 1978, p. 75.
 [18] S. C. Lin *et al.*; *Appl. Phys.*, 1986, **B 40**, 15~23.



简讯

一种新的快速诊断宫颈癌及癌前病变的方法 ——激光激发固有荧光诊断法

本院自 1985 年 2 月~1986 年 1 月一年中共检测 112 例宫颈病变, 同时进行涂片和阴道镜常规检查以资比较, 效果评定均以病理切片为准。结果, 宫颈癌用固有荧光和阴道镜检查的符合率均为 100%, 而涂片法符合率较低为 83.3%; 宫颈非典型增生用固有荧光诊断的符合率达 90.6%, 而阴道镜检查的符合率为 69.8%。实验表明, 荧光诊断法更易发现宫颈癌的癌前病变, 这为宫颈癌的早诊增添

了一种快速的较理想的新诊断方法。该法简便、不需用光敏剂, 故无副作用。因而优于目前的光敏诊断法。另外, 此法还可拍摄彩照或作光谱图记录, 从而为进一步的研究创造了较好的条件。

(上海医科大学妇产科医院

丁爱华 张惜阴 孙时芬 王祥宁

上海医疗器械研究所 曾 堃 虞振芬

1987 年 1 月 2 日收稿)