

采用聚四氟乙烯板表面预电离放电 激发 XeF 准分子紫外发射谱*

李昌勇** 马树森 秦玉英 张兆平 胡天舒

(中国科学院安徽光机所 合肥 230031)

提要 无外加氟施主情况下,在装有聚四氟乙烯面预电离板的准分子激光器中,放电激发 Xe/Ne 混合气体产生了 XeF 准分子。研究了中心波长为 351 nm, 353 nm 和 308 nm 的发射谱。放电激发 Kr/Ne 混合气体,观察到了 KrF 248 nm 发射谱。

关键词 无外加氟施主,表面预电离,准分子发射谱

1 引 言

现有实用稀有气体卤化物准分子激光器都需要外加卤素施主气体,通常是 HCl 和 F₂ 气,均具有强腐蚀性和毒性,若卤素施主能在放电中产生,无需外加,则激光器变得干净安全,易于操作,运转费用也可降低。基于稀有气体卤化物准分子激光的产生所需稀有气体极少,一般在输出能量最高时卤素分压和总气压的比为 2·1000 左右^[1];同时面预电离结构的激光器件通过沿面爬电能将表面结构破坏打出一些表面组分^[2],所以采用含卤素面预电离板放电过程中,可能产生卤素施主进而同 Xe, Kr 等气体发生反应生成准分子。

本实验在面预电离激光器上采用聚四氟乙烯面预电离板无外加氟施主的情况下,放电激发 Xe/Ne 混合气体产生了 XeF 准分子,并对中心波长在 351 nm, 353 nm 以及 308 nm 的谱线进行了实验研究。放电激发 Kr/Ne 混合气体产生了 KrF 准分子。

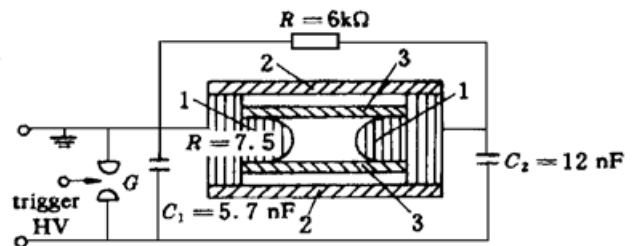


图 1 器件结构和放电网络

G: 火花隙; 1: 电极; 2: 密封外壳;

3: 聚四氟乙烯面预电离板

Fig. 1 Structural drawing and discharge network

G: spark gap; 1: electrodes; 2: sealing shell;

3: Teflon plates for surface preionization

2 实验装置

放电网络采用平板 Blumlein 电路,器件结构和放电网络如图 1 所示。与文献[3]的结构类似,电容 C₁, C₂ 为平板电容器,由铜箔和聚脂薄膜加胶压

* 国家自然科学基金资助项目。

** 现在工作单位:山西大学电子信息系,太原 030006。

收稿日期: 1996—12—02; 收到修改稿日期: 1997—04—14

制而成。电极材料为铝, 表面镀镍。电极面形为 $R7.5$ 圆柱面。电极上下两侧分别安装一条聚四氟乙烯面预电离板。电极长为 420 mm, 电极间距为 16 mm。

实验系统方块图如图 2。摄谱仪为 WPG-100 型 1 m 光栅摄谱仪, 色散率为 0.8 nm/mm, 既能摄谱也能作单色仪用。示波器带宽为 100 MHz。光电倍增管的光阴极光谱响应灵敏度在 200~ 375 nm 范围内相差不超过 15%。摄谱仪入射狭缝宽为 0.1 mm, 高为 1.8 mm。倍增管入射狭缝(即单色仪出射狭缝)宽约

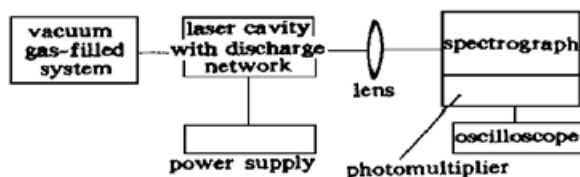


图 2 实验系统方块图

Fig. 2 The block diagram of the experimental system

为 0.3 mm, 高为 10 mm。在 240~ 360 nm 范围内, 用汞灯标准谱分三段对鼓轮刻度与波长对应关系作了标定。逐格转动鼓轮得到的曲线(图 3, 图 7, 图 8)与摄谱法得到的结果一致。文中相关的波长都用摄谱法作了精确标定。

3 实验结果及分析

实验用气体纯度均为 99.99%。当 Ne 气压为 500 mbar, 倍增管电压 $V_{\text{CDB}} = -900$ V, 电源电压 $V = 21$ kV, 触发频率 $f = 1$ Hz 时, 从短波端开始逐格转动鼓轮, 每转一格(波长变化 0.3 nm), 从示波器上读 5 个脉冲强度值, 取平均后, 将各值与相应的鼓轮读数即波长值输入微机, 用 ORIGIN 软件制出图 3 中虚线。虚线上没有强的 Ne 谱峰, 这是由于 Ne 原子在紫外波段发出的光较弱(在红光波段较强), 较强的谱峰是杂质 N_2 分子的 $C^3\Pi_u \rightarrow B^3\Pi_g$ 跃迁谱带头^[4]: 337.1 nm, 315.9 nm, 357.6 nm 和 353.6 nm 等一系列谱。 N_2 易激发, 荧光也强。在虚线上还可看到 248 nm 锐线, 经干版拍谱精确确定此波长是 C 原子的 247.8 nm 谱。放电~ 40 万次后腔内出现黑色碳粉末。当 Xe/Ne 混和气体气压为 500 mbar, $P_{\text{Xe}}/P_{\text{Ne}} = 1/49$ 时, 在同样放电条件下, 获得荧光强度随波长的变化曲线如图 3 中实线。可见, 加 Xe 气后, N_2 分子谱线已明显减弱, 以致几乎观察不到了, C 的 247.8 nm 谱线也变得很弱。代之出现的是 351 nm, 353 nm 和 308 nm 的强线。在 263.5 nm 附近也有较弱但明显的分子谱。351 nm 和 353 nm 线是 XeF 的 $B-X$ 跃迁谱^[5,6], 263.5 nm 线是 XeF 的 $D-X$ 跃迁谱^[5,7], 308 nm 线是 XeF B 态的高振动能级到 X 态的低振动能级跃迁: $(14-2)^{[5]}$, $(13-0)^{[8]}$ 和 $(12-0)^{[8]}$ 。

聚四氟乙烯的分子式是 $\text{F}(\text{---}\underset{\text{F}}{\overset{\text{F}}{\text{C}}}\text{---}\underset{\text{F}}{\overset{\text{F}}{\text{C}}}\text{---})_n\text{F}$ 。在沿面放电情况下, 它的 C-C 键和 F-C

键在具有足够大动能的电子和离子的轰击下断开, 产生了 C, F 以及 C 的氟化物。由于激光器未钝化(钝化后难以判断预电离板上能否释放出卤素施主), 所以活泼的 F 跟激光腔内表面杂质作用掉了, 留下了大量的 C 积累成为后来观察到的黑色粉末。加 Xe 气后, N_2 分子的 $C^3\Pi_u \rightarrow B^3\Pi_g$ 较强跃迁谱 337.1 nm, 315.9 nm, 357.6 nm 等都变得很弱, 几乎观察不到了。说明 N_2 分子上能态 $C^3\Pi_u$ 粒子数很少, N_2 分子的 353.6 nm 谱也来自 $C^3\Pi_u \rightarrow B^3\Pi_g$ 跃迁, 应该更弱。所以观察到的较强 353 nm 谱主要由 XeF 发出。而且, 从谱峰的特征看, 加 Xe 后, 353 nm 谱强度由中心向两边衰减, 具有准分子谱的特征。而纯 Ne 时 353.6 nm 谱向短波方向衰减。

至于 308 nm 谱, 一般情况下, 在有外加氟施主的常规准分子激光器中, 比 351 nm 和 353 nm 弱。本实验中由于还掺杂有 C 的氟化物与其它杂质生成的氟化物, XeF 形成的动力学过程

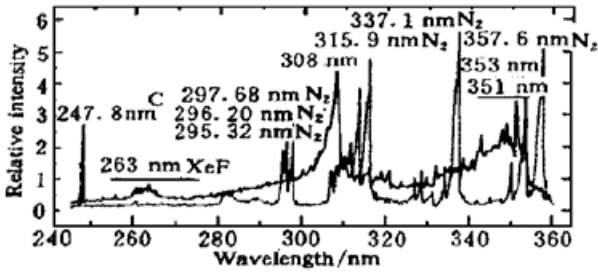


图3 实线为氙和氖混合气体放电荧光强度随波长变化曲线, $V = 21 \text{ kV}$, $P_{Xe} = 10 \text{ mbar}$, $P_{Ne} = 490 \text{ mbar}$, $P_{total} = 500 \text{ mbar}$; 虚线为纯氖气放电荧光强度随波长变化曲线, $V = 21 \text{ kV}$, $P_{Ne} = 500 \text{ mbar}$

Fig. 3 Comparison of the obtained emission spectrum of a Xe/Ne= 1/49 mixture with that of a pure Ne. $P_{total} = 500 \text{ mbar}$, $V = 21 \text{ kV}$

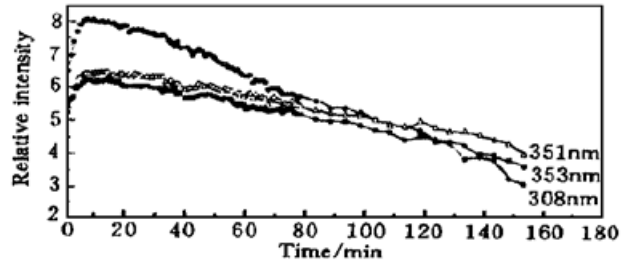


图4 氙氖混合气体放电, $P_{Xe} = 10 \text{ mbar}$, $P_{Ne} = 190 \text{ mbar}$, $V = 21 \text{ kV}$, $V_{GDB} = -900 \text{ V}$ 时, 351 nm, 353 nm 和 308 nm 谱线强度随时间的变化曲线

Fig. 4 The relative intensity of the emission spectra at 351, 353, and 308 nm as a function of time. Xe/Ne= 1/19, $P_{total} = 200 \text{ mbar}$, $V = 21 \text{ kV}$, $f = 1 \text{ Hz}$

可能与常规情况有所不同, 而是有利于 XeF B 态的高振动激发态的生成。文献[4]中报道: 在氙气和一种氟化物(BF_3 , LiF 或 NaF) 混合物中微波放电, 观察到了 308 nm, 351 nm 较强的谱带和 263 nm 较弱谱带。这跟我们的实验结果符合得很好, 说明 308 nm 谱还是跟 Xe 和 F 有关。从曲线上也可见到 308 nm 谱具有强度从中心向两边衰减的准分子谱特征。文献[5]和[8]已经发现了 XeF 308 nm 发射谱, 所以本实验中 308 nm 谱应该是 XeF 发射谱。

图4为触发频率 $f = 1 \text{ Hz}$, $P_{Xe}/P_{Ne} = 1/19$, $P_{total} = 200 \text{ mbar}$, $V = 21 \text{ kV}$ 条件下, 351 nm, 353 nm 和 308 nm 三线强度随时间(即放电次数)的变化曲线。在放电约 7 min, 即 420 次后, 三线强度同时达到最大值。之后, 351 nm 和 353 nm 两线强度基本上随时间按同一线性规律衰减, 308 nm 线也随时间基本是线性衰减, 但衰减速度稍快。由于器件没有钝化^[9], 腔内表面杂质会与打出的氟发生作用, 从而使荧光变弱。腔内杂质对 308 nm 的猝灭作用比对 351 nm 和 353 nm 的猝灭作用大一些, 故 308 nm 衰减较快。

图5是 $P_{Xe} = 10 \text{ mbar}$ 不变, Ne 气气压改变情况下作出的三线强度随总气压的变化曲线,

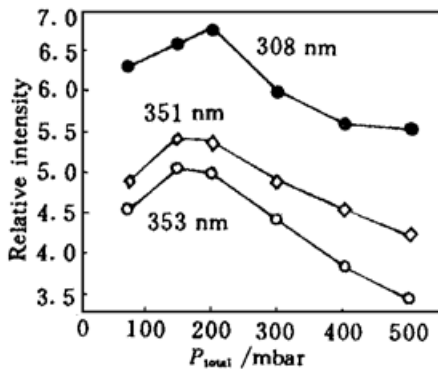


图5 $P_{Xe} = 10 \text{ mbar}$, P_{Ne} 变化时三条谱线强度随总气压的变化曲线

Fig. 5 The graphs show total pressure dependence of the 351, 353 and 308 nm relative intensities in Ne and 10 mbar Xe mixture

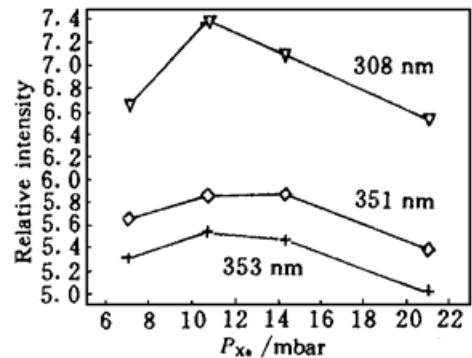


图6 $P_{total} = 200 \text{ mbar}$ 时三线强度随 P_{Xe} 的变化曲线

Fig. 6 The graphs show Xe partial pressure dependence of the 351, 353 and 308 nm relative intensities in 200 mbar Xe/Ne mixture

可以看出: $P_{\text{total}} = 150 \text{ mbar}$ 时, 351 nm 和 353 nm 强度达到最大值。 $P_{\text{total}} = 200 \text{ mbar}$ 时, 308 nm 强度达最大值, 在此气压下, 351 nm 和 353 nm 强度很接近于 $P_{\text{total}} = 150 \text{ mbar}$ 时它们各自的值。在实验误差 $\pm 0.1 \text{ V}$ (荧光光电压在示波器上读数) 范围内分别等于它们各自的最大值。图 6 是在 $P_{\text{total}} = 200 \text{ mbar}$ 不变情况下, 三线强度随不同 Xe 分压的变化曲线。当 $P_{\text{Xe}} = 10.7 \text{ mbar}$ 时, 在实验误差范围内三线强度同时达到最大值。综合图 5 和图 6 所示实验结果得知 $P_{\text{Xe}} = 10 \text{ mbar}$, $P_{\text{Ne}} = 190 \text{ mbar}$ 时, XeF 荧光强度达到最大值。器件内每次放电打出的氟是一定的, 可以形成的最多的 XeF 激发态粒子数也就确定了。Xe 对 XeF 激发态的形成有贡献, 同时也有猝灭作用, 所以过多的 Xe 会使 XeF 荧光变弱。Ne 气的多少会影响放电状况, 从而影响 XeF 的荧光强度。

在 Kr/Ne 混合气体 $P_{\text{Kr}} = 30 \text{ mbar}$, $P_{\text{Ne}} = 200 \text{ mbar}$, $f = 1 \text{ Hz}$, $V_{\text{GDB}} = -900 \text{ V}$, 电源电压 $V = 18 \text{ kV}$ 条件下放电, 测出 248 nm 附近强度随波长的变化曲线如图 7 所示。荧光谱线半高宽大于 2.6 nm。不加 Kr 气时测到的荧光谱线半高宽小于 0.2 nm, 如图 8 所示。加 Kr 气后 248 nm 的荧光谱是 C 原子 247.8 nm 谱与 KrF 248 nm 谱线的叠加, 从而线型变宽。

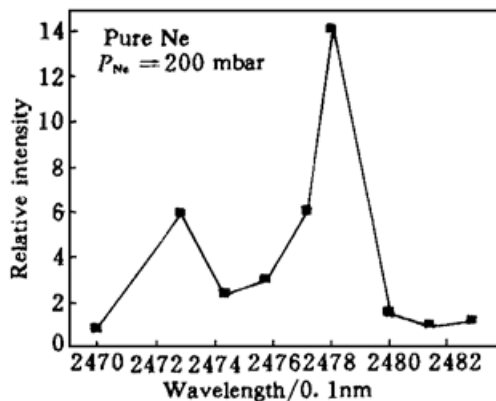


图 7 Kr/Ne 混合气体放电 248 nm 谱线线型

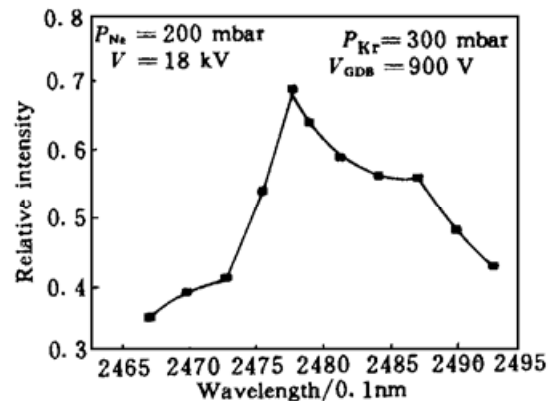


图 8 纯 Ne 放电 248 nm 谱线线型

Fig. 7 The profile of the spectral line centered near 248 nm obtained by discharge in a Kr/Ne mixture

Fig. 8 The profile of the spectral line centered near 248 nm obtained by discharge in pure Ne

参 考 文 献

- 1 Gu Zhiyu, Cao Qiusheng. Investigation on Excimer Lasers with Various Pumping Schemes. Wang Da-heng *et al.*. Beijing/Shanghai Proceeding of an International Conference on Lasers, May 1980, New York: John Wiley & Sons, Inc., 1983, 399~ 411
- 2 R. E. Beverly III. Light emission from high-current surface-spark discharges. E. Wolf, Progress in Optics ¹⁷, North-Holland, 1978, 357~ 411
- 3 Ma Shusen, Shan Xinxin, Cai Lianxin *et al.*. Laser emission on 11 vibrational of the XeCl Excimers. *Laser Journal (激光)*, 1982, 9(9) : 615~ 616 (in Chinese)
- 4 R. W. B. Pearse, A. G. Gaydon. The Identification of Molecular Spectra, 4th Edition. London: Chapman and Hall Ltd, 1976, 356
- 5 Patricia C. Tellinghuisen, Joel Tellinghuisen, J. A. Coxon *et al.*. Spectroscopic studies of diatomic noble gas halides. ¹⁷. Vibrational and rotational constants for the X, B, and D states of XeF. *J. Chem. Phys.*, 1978, 68(11) : 5187~ 5198
- 6 Joel Tellinghuisen, Patricia C. Tellinghuisen, G. C. Tisone *et al.*. Spectroscopic studies of diatomic noble gas halides. ¹⁷. Analysis of XeF 350 nm band system. *J. Chem. Phys.*, 1978, 68(11) : 5177~ 5186
- 7 H. C. Brashears, Jr., D. W. Setser. Transfer and quenching rate constants for XeF (B) and XeF (C) state in low vibrational levels. *J. Chem. Phys.*, 1982, 76(10) : 4932~ 4946

- 8 Allan L. Smith, Peter C. Kobrinsky. Flash photolysis absorption spectroscopy of xenon fluoride vibrational analysis of the $B-X$ transition. *J. Mol. Spectrosc.*, 1978, **69**(1) : 1~ 10
- 9 Xiong Xuming, Nie Jinshong, Ma Shusan *et al.*. Moisture regain during passivation of XeCl laser. *Applied Laser* (应用激光), 1993, **13**(6) : 253 (in Chinese)

XeF Excimer UV Emission Spectrum Excited by Discharge with Surface Preionization over the Teflon Plate

Li Changyong Ma Shusen Qin Yuying Zhang Zhaoping Hu Tianshu
(*Ahui Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Anhui 230031*)

Abstract The XeF excimer is formed in an excimer laser with surface preionization along a Teflon plate by discharge excitation of a Xe/Ne mixture without additional fluorine donor gases. Emission spectra at central wavelengths 351, 353 and 308 nm are studied. The KrF fluorescence spectrum at 248 nm is observed when a Kr/Ne mixture is excited.

Key words without additional fluorine donor gas, surface preionization, excimer emission spectrum