

放电泵浦 XeCl 激光的 X-射线 预电离动力学

楼祺洪 郑承恩 成序三 王润文
(中国科学院上海光学精密机械研究所)

提 要

本文给出了放电泵浦 XeCl 激光器 X-射线预电离动力学的负离子模型,发现预电离条件与气体成分的比例有关,这个模型与我们最近的实验结果符合。

一、引 言

对放电泵浦的惰性气体卤化物(RGH)激光体系通常要进行预电离来获得充分的初始电子密度分布以抑制弧光。已被证明为有效预电离手段的有 X-射线、电子束控制、紫外以及电晕预电离等。最近关于 XeCl 的 HCl/Xe/Ne 混合气体激光体系的 X-射线预电离的动力学过程的实验和理论分析表明负离子过程是预电离的主要过程。Hsia^[1]曾用负离子模型分析 XeF 激光的紫外预电离过程。我们的实验发现 HCl 的浓度对预电离与主放电之间的最佳延时有影响,并可用 $\text{HCl} \rightarrow \text{Cl}^- + e$ (电子)模型来分析,这对研究各种气体成份下最低预电离强度、最佳预电离——主放电延时,从而对提高器件的整体效率有一定的意义。此外,这个模型用于高重复率情况下的研究时更有意义,因为那种情况下残余离子的效应会显得更重要。

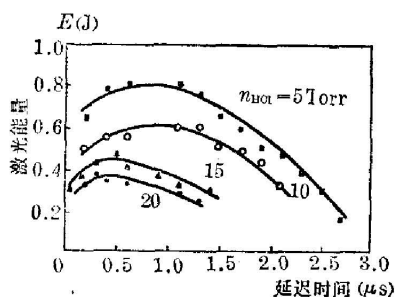


图1 不同 n_{HCl} 下,激光输出能量与延迟时间的关系 ($P_{\text{Xe}} = 30 \text{ Torr}$, $P_{\text{Ne}} = 4 \text{ atm}$)

Fig. 1 The relationship between laser output energy and delay time for different n_{HCl} ($P_{\text{Xe}} = 30 \text{ Torr}$, $P_{\text{Ne}} = 4 \text{ atm}$)

最佳延时有影响,并可用 $\text{HCl} \rightarrow \text{Cl}^- + e$ (电子)模型来分析,这对研究各种气体成份下最低预电离强度、最佳预电离——主放电延时,从而对提高器件的整体效率有一定的意义。此外,这个模型用于高重复率情况下的研究时更有意义,因为那种情况下残余离子的效应会显得更重要。

从 X-射线预电离光源开始到激光主放电加入这一段时间内气体样品的化学动力学可分为三个阶段: (i) X-射线预电离及 Cl^- 的形成过程; (ii) 预电离停止, Cl^- 浓度的衰减过程; (iii) 器件主放电电压加入, Cl^- 转化为初始电子的过程。

在我们的单次长脉冲器件上的实验^[2],这些过程主要有如下特点:

1) 如图1所示,当气体成份是 $P_{\text{HCl}} = 5 \sim 20 \text{ Torr}$, $P_{\text{Xe}} = 30 \text{ Torr}$ 和 $P_{\text{Ne}} = 4 \text{ atm}$ 时, HCl 的浓度 n_{HCl} 对最佳延时 τ 的影响是 n_{HCl} 上升使 τ 下降。而 Xe 的浓度 n_{Xe} 在 $30 \sim 70 \text{ Torr}$ 变化时对 τ 的影响不大;

2) 在长达 $1 \mu\text{s}$ 时间的 X-射线预电离中,测得电子浓度为 $10^9 \sim 10^{10} \text{ cm}^{-3}$ ^[3];

3) 在上述混合气体比份下, 预电离与主放电最佳延时在 $0.4 \sim 1 \mu\text{s}$ 左右^[3];

4) 尽管在典型的激光条件下的 HCl/Xe/Ne 混合气体比例中, 电子猝灭时间小于几十个 ns, 但在主放电比预电离延迟 $1 \sim 2 \mu\text{s}$ 左右时间仍可观察到激光。

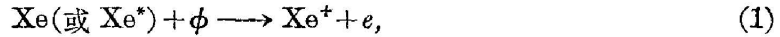
为了从理论上解释上述现象, 特别是最佳延迟时间随 HCl 浓度 n_{HCl} 的变化, 下面我们给出预电离动力学的负离子模型。

二、预电离动力学的负离子模型

根据以上实验结果, 我们提出以下预电离动力学模型, 它可分成下列三个过程:

1. 预电离时 Cl^- 的形成过程

当 X-射线进入 HCl/Xe/Ne 混合气体时, 有如下的电离过程产生电子



式中 Xe^* 和 Ne^* 分别表示激发态 Xe 和 Ne 原子, Xe^+ 和 Ne^+ 则分别表示 Xe 和 Ne 离子, 与紫外光子预电离不同, 高能量的 X-射线光子 ϕ 可以直接电离高达 21.6 eV 电离势的 Ne, 整个的电离程度可由 X-射线强度和 Xe、Ne 的质量吸收系数来进行估算。

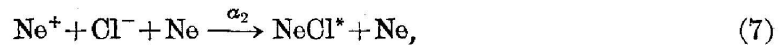
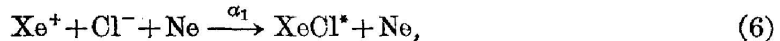
由于 HCl 的存在, 以下过程使电子猝灭:



式中 k_1 、 k_2 和 k_3 为速率常数, $k_1 = 2.5 \times 10^{-10} \text{ cm}^3 \cdot \text{sec}^{-1}$, $k_2 = 2 \times 10^{-8} \text{ cm}^3 \cdot \text{sec}^{-1}$, $k_3 = 2 \times 10^{-8} \text{ cm}^3 \cdot \text{sec}^{-1}$ ^[4~7], $\text{HCl}(v)$ 表示处于 (v) 振动能级的 HCl 分子。

由(1)~(5)式可知, 尽管 X-射线产生电子, 但 HCl 在很短时间 ($\sim \text{ns}$) 内使电子猝灭, 所以, X-射线进入气体的总的效果是使气体中 Cl^- 浓度 n_{Cl^-} 上升。

与电子不同, Cl^- 浓度 n_{Cl^-} 衰减很慢, 主要是下列两个三体复合过程:



其中 α_1 、 α_2 为复合速率常数, $\alpha_1 = 2 \times 10^{-6} \text{ cm}^3 \cdot \text{sec}^{-1}$ ^[3], $\alpha_2 = 2 \times 10^{-6} \text{ cm}^3 \cdot \text{sec}^{-1}$ ^[7]。由(3)~(7)式可得 Cl^- 浓度 n_{Cl^-} 的速率方程

$$\frac{dn_{\text{Cl}^-}}{dt} = n_0(k_1 n_{\text{HCl}} + k_3 n_{\text{HCl}}^{(v)}) - (\alpha_1 n_{\text{Xe}^+} + \alpha_2 n_{\text{Ne}^+}) n_{\text{Cl}^-}, \quad (8)$$

而 $n_{\text{HCl}}^{(v)}$ 满足方程

$$\frac{dn_{\text{HCl}}^{(v)}}{dt} = k_2 n_{\text{HCl}} n_e - k_3 n_{\text{HCl}}^{(v)} n_e, \quad (9)$$

式中 $n_{\text{HCl}}^{(v)}$ 是处于 v 振动能级的 HCl 分子浓度, 一般主要是 $v=1, 2$, n_e 为电子浓度, n_e^0 为初始电子浓度。

根据文献[8]在同一器件上的实验数据, X-射线在激光混合气体中产生 10^{10} cm^{-3} 量级

的电子密度。作为近似,我们设 n_e 在整个 X-射线存在过程中保持为常数, $n_e = n_e^0 = 10^{10} \text{ cm}^{-3}$ 。这样方程(9)式近似化为线性方程(不要再耦合到 n_e 的速率方程中),其解为

$$n_{\text{HCl}}^{(0)} = (k_2/k_3)n_{\text{HCl}}[1 - \exp(-k_3 n_e^0 t)]。 \quad (10)$$

在我们的实验中, X-射线维持时间为 $\tau_1 = 1 \mu\text{s}$, 所以 $n_e^0 k_3 \tau_1 = 2 \times 10^{-4} \ll 1$ 。在 X-射线预电离期间, $\exp(-k_3 n_e^0 t) \simeq 1 - k_3 n_e^0 t$, 并设 $n_e = n_e^0$, 于是(8)式就简化成

$$(dn_{\text{Cl}^-}/dt) = n_e^0 (k_1 + k_2 k_3 n_e^0 t) n_{\text{HCl}} - (\alpha_1 n_{\text{Xe}^+} + \alpha_2 n_{\text{Ne}^+}) n_{\text{Cl}^-}, \quad (11)$$

将 k_1 , k_2 , k_3 , n_e^0 和 τ_1 代入得 $k_1/k_2 k_3 n_e^0 \tau_1 \simeq 60$, 所以在 $t \leq \tau_1$ 的预电离时间内, (11)式右边第一括号中第二项可忽略。

为简化起见,引入 X-射线电离的正离子浓度比例因子

$$K = 1 + \frac{\alpha_2 n_{\text{Ne}^+}}{\alpha_1 n_{\text{Xe}^+}} \quad (1 < K \leq 2),$$

并将 Ne^+ 离子贡献并入 Xe^+ 中,由电荷守恒可知

$$n_{\text{Cl}^-} \simeq n_{\text{Xe}^+} + n_{\text{Ne}^+} = S n_{\text{Xe}^+}, \quad S = 1 + (n_{\text{Ne}^+}/n_{\text{Xe}^+})。$$

于是(11)式又可简化为

$$(dn_{\text{Cl}^-}/dt) = k_1 n_e^0 n_{\text{HCl}} - (\alpha K/S) n_{\text{Cl}^-}^2, \quad (12)$$

(12)式有双曲正切函数型的解

$$n_{\text{Cl}^-} = n_{\text{Cl}^-}^{\infty} \text{th}[\sqrt{(K/S)k_1\alpha_1 n_e^0 n_{\text{HCl}} t}], \quad (13)$$

$$n_{\text{Cl}^-}^{\infty} = n_{\text{Cl}^-}(t \rightarrow \infty) = \sqrt{k_1 n_e^0 n_{\text{HCl}} / (\alpha_1 K/S)}。 \quad (14)$$

引入表示在 X-射线作用下 n_{Cl^-} 达到稳态值 $n_{\text{Cl}^-}^{\infty}$ 的 $(e-1)/(e+1) \simeq 0.5$ 倍时的特征时间

$$\tau = (1/2) [k_1 n_e^0 n_{\text{HCl}} \alpha_1 (K/S)]^{-1/2}。 \quad (15)$$

当 HCl 浓度 n_{HCl} 占 0.1% 左右时, 取 $n_{\text{HCl}} = 2 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$, $n_e^0 = 10^{10} \text{ cm}^{-3}$, 因为 $\alpha_1 = \alpha_2 = \alpha$, 所以 $(K/S) = 1$, 可得

$$\tau \simeq 0.5 \mu\text{s},$$

稳态解

$$n_{\text{Cl}^-}^{\infty} \simeq 7 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3},$$

所以

$$n_{\text{Cl}^-}(t = \tau) \simeq [(e-1)/(e+1)] n_{\text{Cl}^-}^{\infty} \simeq 3.2 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}。$$

2. 预电离停止后 Cl^- 的衰减过程

根据以上分析, X-射线停止时, Cl^- 浓度为 10^{11} cm^{-3} 量级, 电子浓度为 10^{10} cm^{-3} 量级, 电子在 10 ns 之内就被猝灭, 而 Cl^- 的去吸附则为(6)、(7)式两个过程, 而 XeCl , NeCl 只有 ns 量级的寿命, 很快分解为中性原子, 所以(6)、(7)式过程在这里是弱电离气体的中性化过程, 于是有下列 Cl^- 的衰减方程

$$dn_{\text{Cl}^-}/dt = -(\alpha_1 n_{\text{Xe}^+} + \alpha_2 n_{\text{Ne}^+}) n_{\text{Cl}^-} = -(K/S) \alpha_1 n_{\text{Cl}^-}^2,$$

由此

$$n_{\text{Cl}^-} = n_{\text{Cl}^-}^0 / [1 + (K/S) \alpha_1 n_{\text{Cl}^-}^0 t]。$$

这个过程衰减比较慢, 当 $n_{\text{Cl}^-} = n_{\text{Cl}^-}^0/2$ 时

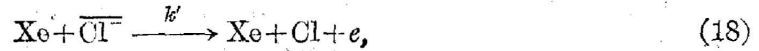
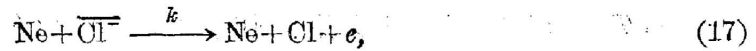
$$\tau' = [1/(K/S) \alpha_1 n_{\text{Cl}^-}^0] = 5 \mu\text{s}。 \quad (16)$$

由此可见, Cl^- 的猝灭相对于电子的猝灭来说是一个很慢的过程。

3. 激光主放电电压加入初期 Cl^- 转化为 e 的过程

设主放电电压与预电离电压有时间延时, 这样, 当主放电电压加在放电气体室两极板之间时, 气体中的带电离子主要是 Cl^- 、 Xe^+ 、 Ne^+ 。下列过程是可能的 Cl^- 向电子的转

换过程:



在(17)、(18)式中, $\overline{\text{Cl}}^-$ 为在外电场中迅速获得接近(或大于)相当于 Cl 的电子亲和势($\sim 3.5 \text{ eV}$)的迁移速率的高速氯离子。

当延时大于预电离维持时间 $1 \mu\text{s}$ 时, 在主放电初始时刻, 光子密度、电子密度均很小, (19)、(20)式的过程可忽略。此外, 在典型的激光条件下, 初始外场约为 $1.5 \times 10^4 (\text{V} \cdot \text{cm}^{-1} \cdot \text{atm}^{-1})$, 在这个强度下场的去吸附过程(21)可略去不计, 因此可主要考虑(17)、(18)式的过程。

作为量级估计, 考虑(18)式反应, 则电子密度 n_e 满足

$$\frac{dn_e}{dt} = kn_{\text{Xe}}n_{\text{Cl}^-} - k_1 n_{\text{HCl}}n_e. \quad (22)$$

初始氯离子浓度 $n_{\text{Cl}^-}^0$ 与预电离——主放电延时有关, 由以上分析可知, 延时在 $0.5 \sim 3 \mu\text{s}$ 范围内, $n_{\text{Cl}^-}^0 \sim 10^{10} \sim 10^{11} \text{ cm}^{-3}$ 。在 Cl^- 的浓度下降到初始的一半(即 $n_{\text{Cl}^-} = n_{\text{Cl}^-}^0/2$)之前, 可把 Cl^- 浓度看作一个常量浓度作初始电子产生源, 实际上只要有 10^8 cm^{-3} 浓度的 Cl^- 转变为电子时, 气体已经足以抑制弧光。电子速率方程在令 n_{Cl^-} 为常数的近似下有

$$n_e = (k'n_{\text{Xe}}n_{\text{Cl}^-}^0/k_1 n_{\text{HCl}}) [1 - \exp(-k_1 n_{\text{HCl}} t)]. \quad (23)$$

这是一个快过程, 其上升时间 $\tau = (1/k_1 n_{\text{HCl}}) \simeq 20 \text{ ns}$, 说明在几十个 ns 量级时间内就有大量 Cl^- 转换为放电初始电子, 而且由于 Cl^- 的均匀分布, 这些初始电子在空间也一定分布均匀, 从而解释了 X-射线停止后约 $2 \mu\text{s}$ 时间内, 尽管电子基本猝灭, 仍可产生激光的原因。

为了使 $n_{\text{Cl}^-} \simeq n_{\text{Cl}^-}^0$ 这一假定成立, 考虑 n_e 的速率方程不能时间过长(在主放电电压加入 20 ns 以后, 已是很复杂的放电等离子体过程, 这已不属本文讨论的范围。这里讨论的是主放电电压从开始加入达到峰值, 而主放电电流未形成这一瞬间内 Cl^- 转化为初级电子的过程)。取典型的放电泵浦模型中电子初始分布的下限 $n_e^0 \sim 10^8 \text{ cm}^{-3}$ 。而速率方程的稳态解 \bar{n}_e 式[(23)中 $t \gg 1/k_1 n_{\text{HCl}}$]为

$$\bar{n}_e = (k'n_{\text{Xe}}/k_1 n_{\text{HCl}})n_{\text{Cl}^-}^0.$$

令二者相等, 并取 $\bar{n}_e = 10^8 \text{ cm}^{-3}$, $k_1 = 2.5 \times 10^{-10} \text{ cm}^3 \cdot \text{sec}^{-1}$, $n_{\text{HCl}} = 2 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$, $n_{\text{Cl}^-}^0 = 5 \times 10^{10} \text{ cm}^{-3}$, $n_{\text{Xe}} = 10^{18} \text{ cm}^{-3}$, 可估算速率常数 $k' = 10^{-13} \text{ cm}^3 \cdot \text{sec}^{-1}$ 。

三、结果与讨论

根据以上讨论的模型, 我们可以看到整个 X-光预电离的全过程。值得指出的是, 随着 X-射线预电离与激光主放电之间的延迟时间 Δt 的不同, 可分为下列两种情况:

1. $\Delta t < T$

这里 T 表示在我们的实验条件下预电离的维持时间, 在上述实验中 $T = 1 \mu s$ 。这种情况即指预电离 X-光未停止时激光主放电开始。此时的 n_e 、 n_{Cl^-} 以及预电离和主放电电压随时间的变化由图 2(a) 给出, 整个过程不包括上述模型中第二阶段。我们可以看出, 在预电离大于 200 ns 时间内, 主要的带负电粒子密度是 Cl^- 浓度而不是电子。

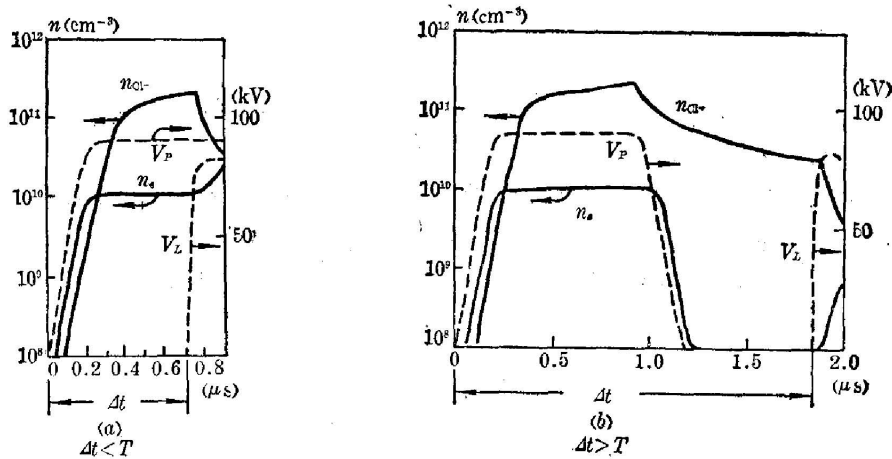


图 2 X 光预电离过程中电子密度 n_e , Cl^- 密度 n_{Cl^-} , 预电离电子枪电压 V_P , 激光放电电压 V_L 随时间的变化。(为简单起见, 模型中假定 V_P 为近似的方波)

Fig. 2 Time histories of n_e , n_{Cl^-} , V_P (voltage of E-beam gun), and V_L (laser discharge voltage) during the X-ray preionization. For simplification, assume V_P is a approximative square wave.

根据文献[9]的实验结果, 在 X-光预电离条件下, 激光输出能量随着预电离度的增大而迅速增加; 而当预电离度达到一定值后会出现饱和趋势, 当 HCl 浓度 n_{HCl} 增加时, (15) 式表示的特征时间 τ 变小, 从而使预电离度最佳的时间相应地缩短, 在实验上应映为最佳延迟时间随 HCl 的浓度 n_{HCl} 增加而减小。图 3 给出 τ 和最佳 Δt 随 n_{HCl} 的变化, 实验曲线

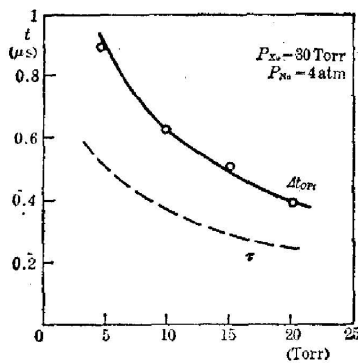


图 3 n_{Cl^-} 增长的特征时间 τ 以及最佳延迟时间 Δt_{opt} 随 HCl 浓度 n_{HCl} 的变化

Fig. 3 The dependance of characteristic time τ and optimum delay time Δt_{opt} on n_{HCl}

$\Delta t_{opt} \sim n_{HCl}$ 与理论曲线 $\tau \sim n_{HCl}$ 有相同的抛物线型变化趋势 ($\propto n_{HCl}^{-1/2}$), 表明负离子模型能正确应映不同 HCl 浓度 n_{HCl} 下的 X-光预电离动力学过程。

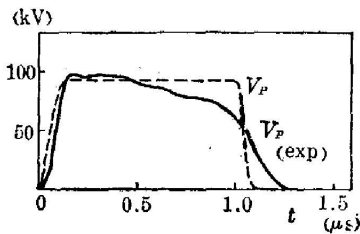


图 4 预电离电子枪电压波形

Fig. 4 The waveform of E-beam gun voltage for preionization

在实验结果中,当延迟时间大于最佳延迟时间 Δt 而又小于 $1\mu s$ 的情况,当 $n_{HCl} < 0.1\%$ 时,激光输出近似保持为常数,这说明大于 Δt 的预电离时间,对 0.1% 的 HCl 的气体比份,预电离度已趋近饱和。当 $n_{HCl} > 0.1\%$ 时,则由于预电离电压波形不是如图 2 的方波,而是如图 4 的实际上一个衰减较慢的后沿的波形,电压的下降引起预电离度下降,引起激光输出下降了一些。

2. $\Delta t > T$

此时主放电的起始时刻晚于 X-射线源的结束时刻,在全过程中必须包含上述模型的第二阶段。显然,由于 Cl^- 在预电离中止后的衰减过程,使激光输出能量随初始 n_{Cl} 值的增加而下降,这与图 1 的实验结果相一致。整个过程中电子密度 n_e 、 Cl^- 密度 n_{Cl^-} 以及预电离电压波形、主放电电压波形由图 2(b) 给出。从这里我们可以看到,预电离停止以后,尽管电子很快地被猝灭,但由于 Cl^- 衰变很慢,从(16)式可知它可以在几个 ns 甚至更长的时间内仍有可观的浓度,一旦主放电加入, Cl^- 的去吸附很快释放电子,形成初始电子分布来抑制弧光,这与我们的实验结果相一致。

总之,我们采用了负离子模型,解释了 X-光预电离 XeCl 准分子激光在不同 HCl 浓度 n_{HCl} 下的预电离动力学过程,为准分子激光的延迟线路设计提供了理论依据。

参 考 文 献

- [1] J. Hsia; *Appl. Phys. Lett.*, 1977, **30**, No. 2 (15 Jan), 101.
- [2] 楼祺洪,王润文等;《用于准分子激光器的大面积 X 光源及其预电离特性》, (待发表)。
- [3] 郑承恩;《光学学报》, 1983, **3**, No. 6 (Sep), 525.
- [4] W. L. Nighan *et al.*; *Appl. Phys. Lett.*, 1980, **36**, No. 7 (1 Apr), 497.
- [5] M. Allan *et al.*; *J. Chem. Phys.*, 1981, No. 3 (1 Feb), 1687.
- [6] R. E. Center *et al.*; *J. Chem. Phys.*, 1974, No. 9 (1 Apr), **61**, 3785.
- [7] L. A. Levin *et al.*; *IEEE J. Quant. Electron.*, 1981, **QE-17**, No. 10 (Oct), 2282.
- [8] 霍芸生;《激光》, 1982, **9**, No. 12 (Dec), 753.
- [9] 佳田真(まこと);《レーザー研究》, 1979, **7**, No. 3 (Sep), 297.

X-ray preionization kinetics of discharge pumped XeCl laser

LOU QIHONG ZHENG CHENGGEN CHENG XUSAN AND WANG RUNWEN
(Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Academia Sinica)

(Received 5 January 1984)

Abstract

A negative ion model of X-ray preionization kinetics is given for a discharge pumped XeCl laser. It is found that the preionization conditions are related to the concentration of the gas mixtures. The result shows that the model is in good agreement with our recent experiments.