

# 放电泵浦 $\text{Xe}_2\text{Cl}^*$ 的形成和猝灭动力学

楼 祺 洪

(中国科学院上海光学精密机械研究所)

## 提 要

通过比较  $\text{XeCl}(B-X)$ ,  $(C-A)$  和  $\text{Xe}_2\text{Cl}$  荧光强度随总气体压力的变化, 定量研究了放电泵浦  $\text{Xe}_2\text{Cl}^*$  的形成和猝灭动力学, 并确定了  $\text{HCl}$  对  $\text{Xe}_2\text{Cl}^*$  的消激发速率常数为  $9.2 \times 10^{-10} \text{ cm}^3/\text{sec}$ 。

三元稀有气体卤化物准分子的发光波段大部分位于可见光谱区, 用电子束泵浦的三元准分子荧光和激光特性表明<sup>[1]</sup>, 它们的谱带宽度较宽, 有希望成为可见光谱区可调谐激光源。本文利用一台 X 射线预电离的脉冲雪崩放电装置, 通过比较  $\text{XeCl}(B-X)$ ,  $(C-A)$  和  $\text{Xe}_2\text{Cl}$  荧光强度随气体压力的变化, 定量研究了放电泵浦  $\text{Xe}_2\text{Cl}^*$  的形成和猝灭动力学过程, 并确定了  $\text{HCl}$  对  $\text{Xe}_2\text{Cl}^*$  的消激发速率常数为  $9.2 \times 10^{-10} \text{ cm}^3/\text{sec}$ 。

测量荧光特性的实验装置在文献[2]中已有报道, 我们取放电体积为  $2 \times 1 \times 1 \text{ cm}^3$ , 触发脉冲首先控制 X 射线源在放电室内产生 X 射线预电离, 经过一定的时间延迟之后, 另一个触发脉冲驱动放电电源, 放电区发出的荧光经过石英窗口可分别用光谱仪和光电检测系统接收。放电工作气体为  $\text{Ne}/\text{Xe}/\text{HCl}$  混合气体, 使纯度均在 99.9% 以上, 气体预混在一个

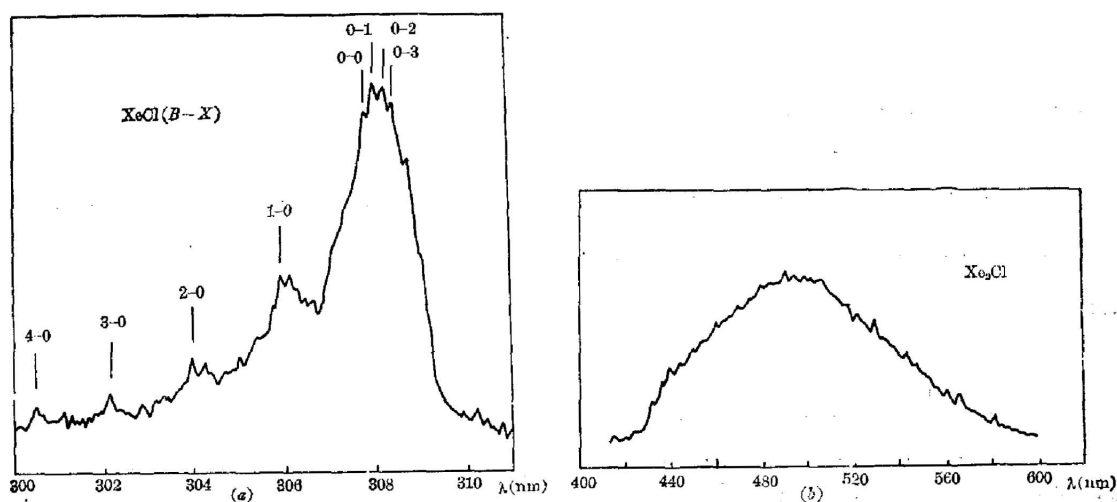


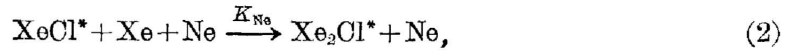
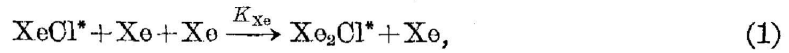
图 1 典型的  $\text{XeCl}(B-X)$  和  $\text{Xe}_2\text{Cl}$  荧光谱扫描迹, 脉冲放电长度为 200 ns, 气体混合比  $\text{Ne}:\text{Xe}:\text{HCl}=989:10:1$

Fig. 1 Typical densitometer records of the  $\text{XeCl}(B-X)$  and  $\text{Xe}_2\text{Cl}$  fluorescence taken from a 200 ns pulse discharge using a  $\text{Ne}:\text{Xe}:\text{HCl}=989:10:1$  mixture

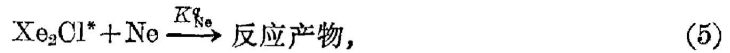
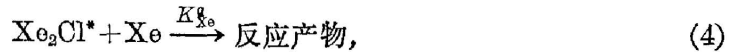
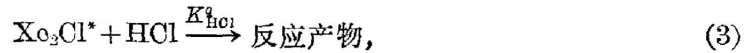
不锈钢筒内 30 分钟左右再充入放电室,以保证混气的均匀性。

用光栅光谱仪拍摄的荧光光谱表明,  $\text{XeCl}(B-X)$  荧光带的中心波长为 308 nm, 其谱带宽度约为 1~2 nm, 图 1(a) 给出了典型的荧光谱扫迹, 其中 0-1, 0-2 等数字表明  $B-X$  跃迁的振动结构。同样, 我们记录了  $\text{XeCl}(C-A)$  荧光带, 其中心波长为 345 nm。图 1(b) 是  $\text{Xe}_2\text{Cl}$  荧光谱扫迹, 其中心波长约为 485 nm, 谱带宽度约为 80 nm。为了实验测量各荧光带强度, 在快速光电二极管前必须放置有一定带宽的滤光片。我们采用的滤光片特性如下:  $\text{XeCl}(B-X)$  带,  $\lambda_{\text{中心}}=306$  nm,  $\text{FWHM}=11.8$  nm,  $\lambda_{\text{中心}}$  处的透过率为 17%;  $\text{XeCl}(C-A)$  带,  $\lambda_{\text{中心}}=360$  nm,  $\text{FWHM}=58$  nm,  $\lambda_{\text{中心}}$  处的透过率为 57%;  $\text{Xe}_2\text{Cl}$  带,  $\lambda_{\text{中心}}=470$  nm,  $\text{FWHM}=137$  nm,  $\lambda_{\text{中心}}$  处的透过率为 69%。由于放电室有两个窗口, 可以同时测量两个光谱带, 通过两台接收系统互相交换位置交叉定标, 再配上已定标的中性密度滤光片使接收系统工作在线性范围, 可以测量出各光谱带之间的相对强度。

放电泵浦三元准分子是二元准分子经过三体碰撞而形成的, 它的形成伴随着双原子准分子的非光学跃迁猝灭。 $\text{Xe}_2\text{Cl}$  形成的主要反应过程为:



而主要猝灭过程为:



根据以上动力学过程, 可写出  $\text{Xe}_2\text{Cl}^*$  满足的速率方程

$$\frac{d}{dt} n_{\text{Xe}_2\text{Cl}^*} = [K_{\text{Xe}} n_{\text{Xe}}^2 + K_{\text{Ne}} n_{\text{Xe}} n_{\text{Ne}}] - \frac{n_{\text{Xe}_2\text{Cl}^*}}{\tau}, \quad (6)$$

式中  $n_{\text{Xe}_2\text{Cl}^*}$ ,  $n_{\text{Xe}}$  和  $n_{\text{Ne}}$  分别表示  $\text{Xe}_2\text{Cl}^*$ ,  $\text{Xe}$  和  $\text{Ne}$  的粒子数密度, 而  $\tau$  则由下式给出:

$$\tau^{-1} = (\tau_{\text{rad}}^{\text{Xe}_2\text{Cl}})^{-1} + K_{\text{HCl}}^q n_{\text{HCl}} + K_{\text{Xe}}^q n_{\text{Xe}} + K_{\text{Ne}}^q n_{\text{Ne}}. \quad (7)$$

这里  $\tau_{\text{rad}}^{\text{Xe}_2\text{Cl}}$  为  $\text{Xe}_2\text{Cl}$  的辐射寿命,  $n_{\text{HCl}}$  为  $\text{HCl}$  的粒子数密度, 由于本实验的放电时间为 200 ns, 放电电流近似为矩形波<sup>[2]</sup>, 故可采用稳态近似:  $\frac{d}{dt} n_{\text{Xe}_2\text{Cl}^*} = 0$ , 由文献 [3] 的分析有:

$$\frac{I_{\text{Xe}_2\text{Cl}}}{I_{\text{XeCl}}} = [K_{\text{Xe}} n_{\text{Xe}}^2 + K_{\text{Ne}} n_{\text{Ne}} n_{\text{Xe}}] \tau \left( \frac{\tau_{\text{rad}}^{\text{XeCl}}}{\tau_{\text{rad}}^{\text{Xe}_2\text{Cl}}} \right), \quad (8)$$

上式中  $I_{\text{XeCl}}$  和  $I_{\text{Xe}_2\text{Cl}}$  分别代表相应的荧光强度, 这里我们将  $I_{\text{XeCl}} = I_{\text{XeCl}(B-X)} + I_{\text{XeCl}(C-A)}$  代替文献 [3] 中的  $I(308) \equiv I_{\text{XeCl}(B-X)}$ , 其原因可从图 2 获得。图 2(a) 给出在  $\text{Ne}:\text{Xe}:\text{HCl}=989:10:1$  条件下, 二元准分子的  $(B-X)$  和  $(C-A)$  荧光强度随气体压力的变化, 在 2~7 个大气压范围内,  $I(B-X)$  和  $I(C-A)$  的比值变化很小(为  $4.0 \pm 0.3$ ), 它表明在上述气压范围内  $B, C$  二个能级已很好的混合, 因此  $\text{XeCl}^*(B)$  和  $\text{XeCl}^*(C)$  态均可通过 (1) 和 (2) 式的碰撞过程产生三元准分子。为此我们在 (8) 式中用  $I_{\text{XeCl}}$  代表  $(B-X)$  和  $(C-A)$  荧光强度之和。(8) 式中  $\tau_{\text{rad}}^{\text{XeCl}}$  则代表  $\text{XeCl}^*$  的辐射寿命, 我们亦认为它是两个能级混合态的寿命。

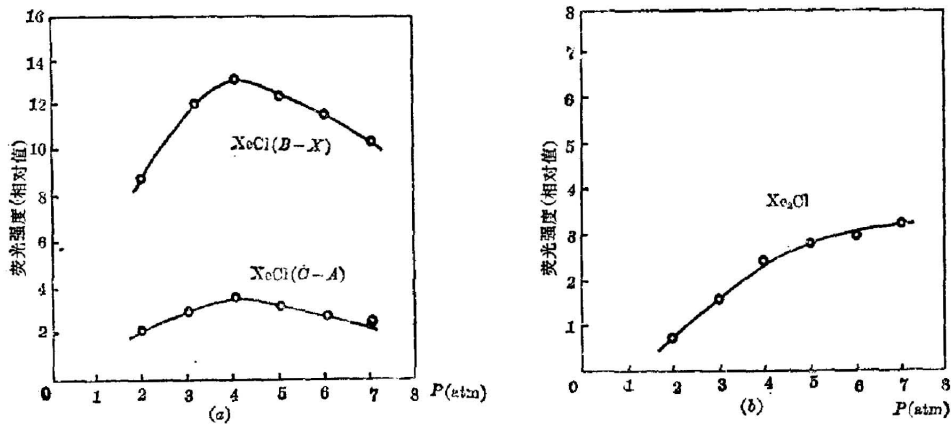


图2  $XeCl(B-X)$ ,  $(C-A)$  和  $Xe_2Cl$  峰值荧光强度随气体压力的变化  
 Fig. 2 The dependence of the peak value of  $XeCl(B-X)$ ,  $(C-A)$  and  $Xe_2Cl$  spontaneous emission intensity on the gas pressure  $P$

图2(b)给出  $Xe_2Cl$  荧光强度随气体压力的变化, 与二元准分子的情况不同, 三元准分子荧光强度在2~7个大气压范围内随气压升高而单调上升, 表明高压下三体复合过程的加速。(8)式中已知  $K_{Xe} = 7.31 \times 10^{-31} \text{ cm}^3/\text{sec}^{[4]}$ ,  $K_{Ne} = 1.5 \times 10^{-31} \text{ cm}^3/\text{sec}^{[5]}$ , 根据实验值求得的不同气压下  $I_{Xe_2Cl}$  与  $I_{XeCl}$  的比值, 就可以得到  $\tau^{-1}$  与气体压力的关系曲线(图3)。在计算中我们取  $\tau_{rad}^{Xe_2Cl} = 135 \text{ ns}$ , 从图3可见, 当气体压力趋近于0时, 曲线与纵坐标的交点为  $0.7 \times 10^7 \text{ sec}^{-1}$ , 相应于  $\tau_{rad}^{Xe_2Cl} = 143 \text{ ns}$ , 这与我们上述采用值  $135 \text{ ns}$  十分接近。

在已知  $\tau^{-1}$  与气压关系曲线后, 我们可以由公式(7)求解不同气压下的  $\sum_M K_M^q \approx 0.989 K_{Xe}^q + 0.01 K_{Ne}^q + 0.001 K_{HCl}^q$  值, 上式中的数字代表本实验中特定的气体百分比, 对于其它的气体混合比可代入其它数字。计算结果表明在2~7个大气压范围内  $\sum_M K_M^q = (9.6 \pm 0.4) \times 10^{-13} \text{ cm}^3/\text{sec}$ 。已知

$K_{Xe}^q \approx 5 \times 10^{-13} \text{ cm}^3/\text{sec}$  和  $K_{Ne}^q \approx 3 \times 10^{-14} \text{ cm}^3/\text{sec}^{[3]}$ , Xe 和 Ne 对  $Xe_2Cl^*$  猝灭过程的贡献为  $3.5 \times 10^{-14} \text{ cm}^3/\text{sec}$ , 仅占  $\sum_M K_M^q$  的4%左右, 由此我们可以确定文献中尚未见报道的速率常数  $K_{HCl}^q$  约为  $9.2 \times 10^{-10} \text{ cm}^3/\text{sec}$ , 并认为对  $Xe_2Cl^*$  的主要猝灭过程来自 HCl。与已报道的其它卤素的速率常数, 例如  $K_{Cl_2}^q = 2 \times 10^{-10} \text{ cm}^3/\text{sec}$  和  $K_{CCl_4}^q = 6 \times 10^{-10} \text{ cm}^3/\text{sec}^{[3]}$  相比, 表明 HCl 对  $Xe_2Cl$  的猝灭效应强于  $Cl_2$  和  $Cl_4$ , 这与采用 HCl 作为卤素施主时荧光强度比采用  $Cl_2$  或  $CCl_4$  作卤素施主时荧光强度较低的结果相一致。

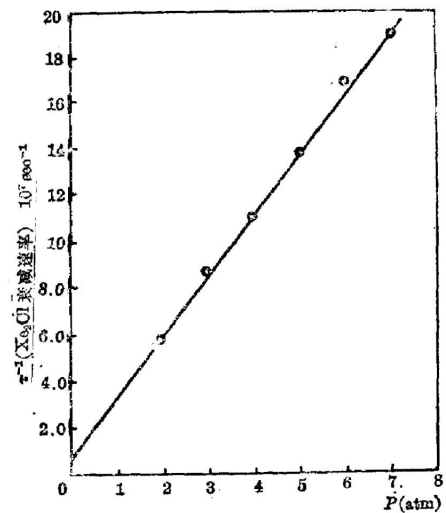


图3  $\tau^{-1}(Xe_2Cl)$  与总气体压力的关系  
 Fig. 3 Variation of the  $\tau^{-1}(Xe_2Cl)$  with the gas pressure

## 参 考 文 献

- [1] G. Marowsky *et. al.*; *IEEE J. Quantum. Electron.*, 1982, **QE-18**, No. 5 (May), 898.  
[2] 楼祺洪; 《光学学报》, 1984, **4**, No. 4 (Apr) 289.  
[3] G. Marowsky *et. al.*; *J. Chem. Phys.*, 1981, **75**, No. 3 (Aug), 1153.  
[4] K. Y. Tang *et. al.*; *33rd Gaseous Electronics Conf.*, (Oct), 1980.  
[5] V. H. Shui and C. Duzy; *Appl. Phys. Lett.*, 1980, **36**, No. 2 (Jan), 135.

**Formation and quenching kinetics of discharge pumped Xe<sub>2</sub>Cl\***

LOU QIHONG

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

(Received 19 June 1984)

**Abstract**

By comparing the fluorescence intensity of XeCl(*B—X*), (*C—A*) and Xe<sub>2</sub>Cl as a function of the total gas pressures, the formation and quenching kinetics of discharge pumped Xe<sub>2</sub>Cl\* have been quantitatively studied and the HCl deexcitation rate constant for Xe<sub>2</sub>Cl\* have been determined to be  $K_{\text{HCl}}^0 = 9.2 \times 10^{-10} \text{ cm}^3/\text{sec}$ .