

# 相对论电子束泵浦Xe<sub>2</sub>Cl激光的实验研究\*

郭振华

(华中工学院)

F.K. 梯特尔 W.L. 威尔逊 M.C. 斯梅岭

(美国莱斯大学)

G. 马日乌斯基

(德国马普研究所)

**提要:** 从荧光开始研究相对论电子束泵浦 Xe<sub>2</sub>Cl 准分子激光, 给出详细的实验资料和分析讨论, 特别研究了谐振腔装置对宽带内波长可调谐性的影响, 评价了各种稀有气体卤化物混合气体的荧光和激光波谱特性与时间特性。

## Experimental study of a REB pumped Xe<sub>2</sub>Cl excimer laser

Guo Zhenhua

(Laser Institute, Huazhong University of Science & Technology)

F. K. Tittel, W. L. Wilson, M. C. Smaajling

(Rice University, USA)

G. Marowsky

(Max-Planck Institute, Gottingen, Germany)

**Abstract:** The development of a REB pumped Xe<sub>2</sub>Cl excimer laser described in this paper began with the study of the fluorescence. Detailed experimental data are presented and reviewed. In particular, the influence of the optical resonator configuration upon the broad-band wavelength tuning is studied. The spectral and temporal fluorescence and laser characteristics of various rare gas halide mixtures are evaluated.

相对论电子束 (REB) 泵浦的三原子稀有气体卤化物准分子 Xe<sub>2</sub>Cl 的激光振荡, 是第一个被观察到的这类三原子准分子激光振荡<sup>[1]</sup>。由于 Xe<sub>2</sub>Cl 的宽带可调谐激光输出

(480~540 毫微米) 正好处在蓝绿波段内, 有

收稿日期: 1983年10月15日。

\* 部分内容曾在 1983 年中国广州国际激光会议上宣读。

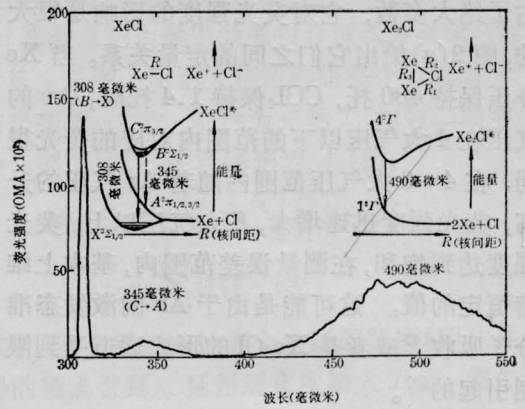
希望制成商品连续可调谐激光器，所以引起广泛的兴趣。我们利用荧光和激光两方面的实验结果对它进行一些详细的研究。

### 荧光实验结果分析

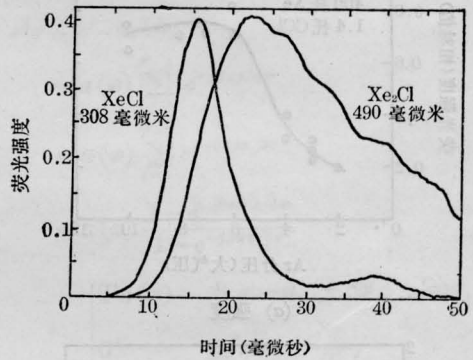
荧光测量的实验装置可参考[2]的描述。这里从大量的观测资料中选取某些典型的、有代表性的数据进行讨论。

图1(a)是10毫微秒脉宽的REB泵浦不同比例的混合气体(Ar+Xe+CCl<sub>4</sub>)时，由OMA记录单个荧光脉冲得到的典型波谱曲线。其中XeCl(B→X)、XeCl(C→A)和Xe<sub>2</sub>Cl的波谱展现在不同的波段上。它们之间的显著差别是带宽和强度截然不同。这种变化反映出B→X、C→A跃迁和三原子准分子间的跃迁对应的能级结构迥异，XeCl(B→X)对应于双原子准分子能级B<sup>2</sup>Σ<sub>1/2</sub>→X<sup>2</sup>Σ<sub>1/2</sub>的束缚-弱束缚型跃迁，所以是窄带辐射(1~2毫微米)，XeCl(C→A)对应于双原子准分子能级C<sup>2</sup>Π<sub>3/2</sub>→A<sup>2</sup>Π<sub>1/2,3/2</sub>的束缚-弱排斥型跃迁，发射带变宽；而Xe<sub>2</sub>Cl对应于三原子准分子能级4<sup>2</sup>T<sup>+</sup>→1<sup>2</sup>T<sup>-</sup>的束缚-强排斥型跃迁，发射带比双原子准分子要宽得多(60~80毫微米)，以上有关跃迁的能级示意图附在图1(a)波谱曲线的上方，其中R代表构成准分子的原子核间距。

图1(b)则示出XeCl在308毫微米和Xe<sub>2</sub>Cl在490毫微米的典型时间特性曲线(即波形图)。由图看出紫外光随时间的衰减速率比可见光随时间的衰减速率大很多，而且三原子准分子光跃迁上能级的形成比双原子准分子要延迟一段时间。当XeCl 308毫微米荧光几乎衰减到零时，Xe<sub>2</sub>Cl的490毫微米荧光才达到峰值。这就成为下述三原子准分子形成动力学模型的实验根据之一：三原子准分子是双原子准分子通过与稀有气体原子碰撞猝灭而形成的，双原子准分子是三原子准分子的前驱粒子<sup>[3]</sup>。



(a) XeCl(B→X)、XeCl(C→A)和Xe<sub>2</sub>Cl的荧光跃迁能级和荧光发射谱



(b) XeCl(B→X)、Xe<sub>2</sub>Cl的荧光时间特性

图1 XeCl、Xe<sub>2</sub>Cl的荧光特性

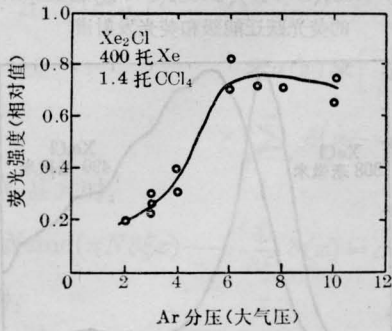
另外通过对荧光参数测量，还确定了上能级粒子数N\*和辐射寿命τ。

混合气体中各种成分对激光的形成都有着重要作用，需要在实验上仔细确定他们的取值范围，以求得到最佳气体混合比和总气压。对于Xe<sub>2</sub>Cl，用1兆电子伏，120安/厘米<sup>2</sup>，8~10毫微秒的REB横向泵浦时，我们得到的气压范围是Ar/2~10大气压，Xe/100~800托，CCl<sub>4</sub>/0.4~3.0托，另外，我们还改用N<sub>2</sub>或者Ne代替Ar作缓冲气体，改用Cl<sub>2</sub>或者HCl代替CCl<sub>4</sub>作为氯的施主进行了观测，但是都未得到良好的效果，因此下面的讨论也就只限于Ar、Xe和CCl<sub>4</sub>。

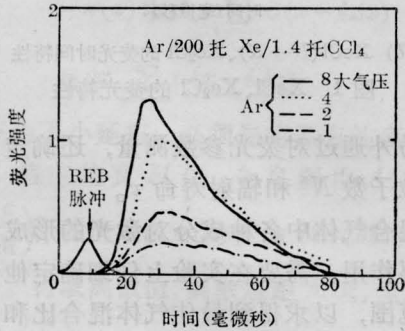
#### 1. Ar对荧光的影响

作为一种高压缓冲气体(由几个大气压到十几个大气压)，Ar在混合气体中的数量

占了绝大多数，它对荧光强度的影响是很大的，图2(a)给出它们之间的定量关系。当Xe分压保持400托，CCl<sub>4</sub>保持1.4托时，Ar的气压在4大气压以下的范围内对应的荧光很弱。在4~6大气压范围内随着Ar气压的升高，荧光强度迅速增大，6大气压以上，荧光强度达到饱和，在测量误差范围内，基本上维持恒定的值。这可能是由于Ar的激发态准分子吸收<sup>[4]</sup>或者是Xe<sub>2</sub>Cl的形成通道受到限制引起的<sup>[3]</sup>。



(a) 强度



(b) 波形

图2 Ar对Xe<sub>2</sub>Cl荧光的影响

用光电二极管测量了对应于相同条件下的荧光波形(图2(b))。虽然荧光强度发生了显著的变化，但是波形时间宽度却基本上保持不变。不同气压Ar对荧光的猝灭速率，可以由图2(b)的各个脉冲波形测出。Ar对Xe<sub>2</sub>Cl荧光的猝灭常数是  $K_{Ar} \sim (3 \pm 1) \times 10^{-14}$  厘米<sup>3</sup>秒<sup>-1</sup>。由于Ar的气压甚高(6大气压以上)，测量相对误差较小，所以计算出的  $K_{Ar}$  值应该还是比较准确的。

## 2. Xe对荧光的影响

作为宿主气体，Xe的作用是相当复杂的，它对激光强度的影响受到缓冲气体Ar的约束。图3表明，当Ar气压较低时(例如保持2大气压)，如果CCl<sub>4</sub>保持2托不变，则Xe<sub>2</sub>Cl的荧光强度在Xe分压为0~200托范围内随Xe分压升高而增大甚快；在200~400托范围内，Xe<sub>2</sub>Cl荧光强度增加缓慢；400托以上荧光强度达到饱和。可是当Ar气压保持在激光器正常运转值(8大气压)时，Xe<sub>2</sub>Cl的荧光强度随Xe分压的变化呈现出极大值，峰值对应的Xe分压大约为250~300托，由此似乎可以说明，Xe<sub>2</sub>Cl的荧光强度与Xe分压间的关系主要取决于Xe<sub>2</sub>Cl\*的形成通道，而Xe\*亚稳态的吸收是次要的。

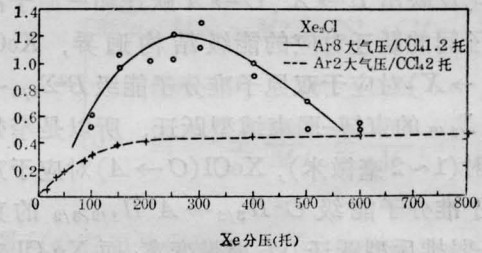
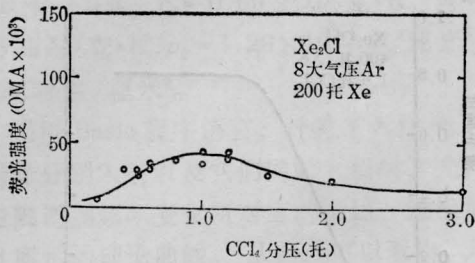


图3 Xe对Xe<sub>2</sub>Cl荧光的影响

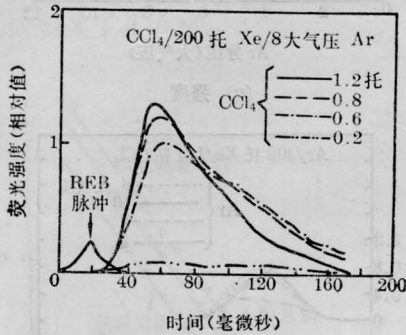
用光电二极管检测不同Xe分压时Xe<sub>2</sub>Cl荧光强度的衰减速率，在实验测量的精度范围内它们趋于一个常数，所以只能大体上估计出Xe对Xe<sub>2</sub>Cl荧光的猝灭常数  $K_{Xe} < 1 \times 10^{-13}$  厘米<sup>3</sup>·秒<sup>-1</sup>。

## 3. CCl<sub>4</sub>对荧光的影响

作为卤化物施主，CCl<sub>4</sub>对荧光的作用相当敏感。它强烈地影响着Xe<sub>2</sub>Cl的荧光强度和荧光衰减时间。图4(a)示出了在OMA输出端观察到的荧光强度时间积分值随CCl<sub>4</sub>分压的变化，图4(b)给出了荧光波形幅度和宽度的变化。当Ar保持8大气压，Xe保持200托时，Xe<sub>2</sub>Cl的荧光强度在CCl<sub>4</sub>为~1.0托附近出现峰值，CCl<sub>4</sub>分压稍微偏离1托(例如0.5托或1.5托)，荧光强度就呈现减弱。因此在进行Xe<sub>2</sub>Cl激光实验时，混合气



(a) 强度



(b) 波形

图4 CCl<sub>4</sub>对Xe<sub>2</sub>Cl荧光的影

体中 CCl<sub>4</sub> 的浓度必须非常细心地精确控制,通常是把激活介质反应室内抽成 10<sup>-2</sup> 托(用机械泵)到 10<sup>-4</sup> 托(用油泵)的真空度,然后利用 Bartron 监视,首先缓缓地充入适当高纯度 Xe 高纯度气体,最后充入 Ar 气体。由于 CCl<sub>4</sub> 的绝对量十分少,一两次 REB 泵浦之后,CCl<sub>4</sub> 的相对改变量可能相当大,其他气体成分被泵浦时生成的副产品杂质等,都可能大大影响 Xe<sub>2</sub>Cl\* 的产生和猝灭。为了保证实验数据良好一致性及可靠性,实验时每次配好的混合气体仅用 REB 泵浦两次就抽去,再换新鲜的混合气体。

CCl<sub>4</sub> 对 Xe<sub>2</sub>Cl 荧光猝灭常数  $K_{\text{CCl}_4} \sim (6 \pm 1) \times 10^{-10}$  厘米<sup>3</sup>秒<sup>-1</sup>, 它比  $K_{\text{Ar}}$  大四个数量级,比  $K_{\text{Xe}}$  大三个数量级。

Xe<sub>2</sub>Cl 荧光的波谱特性和时间特性数据列于表 1, 其中由光强测量计算出的激发态粒子数密度  $N^*$ , 已根据滤光片和光阑的参数进行了修正,得到的小信号增益  $g$  约为 2.4% 厘米<sup>-1</sup>, 已大大超过所需要的激光振荡阈值 1.0% 厘米<sup>-1</sup>。在表 1 中还列出了

表 1 Xe<sub>2</sub>Cl 荧光资料小结

混合气体成分	Ar	Xe	CCl <sub>4</sub>
最高气压	6 大气压	270 托	~1 托
猝灭常数 $K$	$(3 \pm 1) \times 10^{-14}$ 厘米 <sup>3</sup> ·秒 <sup>-1</sup>	$< 1 \times 10^{-13}$ 厘米 <sup>3</sup> ·秒 <sup>-1</sup>	$(6 \pm 1) \times 10^{-10}$ 厘米 <sup>3</sup> ·秒 <sup>-1</sup>
Tang 的 $K$ 值 <sup>[5]</sup>	$< 3 \times 10^{-14}$ 厘米 <sup>3</sup> ·秒 <sup>-1</sup>	$< 1 \times 10^{-13}$ 厘米 <sup>3</sup> ·秒 <sup>-1</sup>	$6.7 \times 10^{-10}$ 厘米 <sup>3</sup> ·秒 <sup>-1</sup>

Xe<sub>2</sub>Cl 荧光参数

辐射寿命 $\tau \sim$	中心波长 $\lambda \sim$	带宽 $\Delta\lambda \sim$
205 毫微秒	490 毫微米	80 毫微米
增益截面 $\sigma \sim$	激发态粒子数密度 $N^* \sim$	光学增益 $g \sim$
$0.8 \times 10^{-17}$ 厘米 <sup>2</sup>	$3 \times 10^{15}$ 厘米 <sup>-3</sup>	2.4% 厘米 <sup>-1</sup>

K. Y. Tang 等人<sup>[5]</sup> 给出的猝灭常数, 以便与我们得到的值进行比较。

### 激光实验结果分析

实验装置可参看[6]中的安排。由于一般说来稀有气体卤化物三原子准分子的光学增益比较小,为减少损耗,常常把谐振腔放入激活介质反应室内部。但这就给谐振腔的调整带来一定的困难,我们自己设计了一套机械密封式谐振腔卡具,适合于改变谐振腔长度、反射镜、耦合镜之间的相对方位。荧光测量所得的某些参数(例如混合气体最佳比)可作为激光观测的出发点。荧光波谱位置则是实现激光振荡时选择谐振腔镜片参数的依据,适当选取这些参数可使激光振荡能够在尽量宽的波带内超越阈值,并达到尽可能高的激光强度和最大的功率提取。

图 5 中右边实线代表 REB 泵浦混合气体(Ar/8 大气压+Xe/250 托+CCl<sub>4</sub>/1.2 托)时,由 OMA 记录到的激光和荧光波谱曲线。激光强度大大超过荧光强度,激光带宽(20 毫微米)比荧光带宽(80 毫微米)窄了许多。另外激光振荡的中心波长向长波方向移动了 ~28 毫微米(从 490 → 518 毫微米),这种红移除受谐振腔镜片反射率带宽的影响外(520

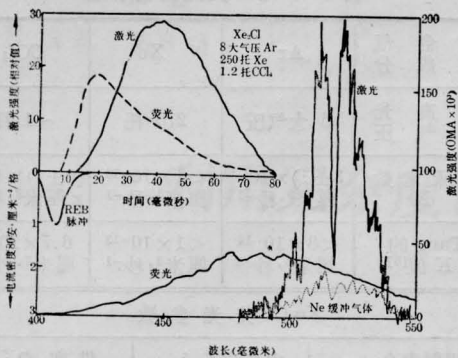


图5 Xe<sub>2</sub>Cl 激光的波谱特性和时间特性

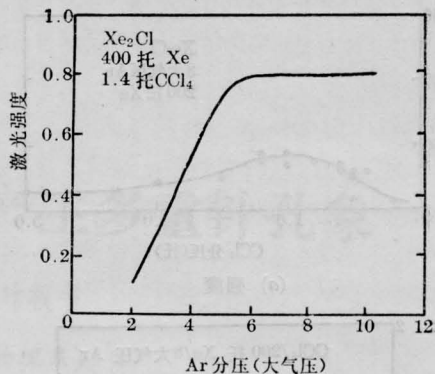
±15 毫微米), 光学增益与波长四次方成正比  
的规律也是起因之一<sup>[7]</sup>。

图5左上部分是用相同的 REB 泵浦气体, 由光电二极管记录到的激光与荧光波形 (强度随时间的变化), 同时也标出了 REB 波形的位置。激光脉冲变窄了 (~36 毫微米), 而且明显地延迟了一段时间 (比荧光峰值延迟 ~23 毫微米, 比 REB 延迟 ~35 毫微米)。延迟的原因是多方面的, 除了常规损耗影响外, 腔内氙准分子的瞬时吸收和其他原子吸收、背景吸收等都是重要原因。

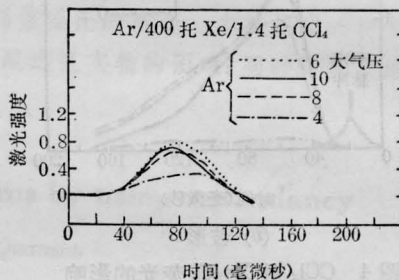
在同样条件下, 用 N<sub>2</sub> 代替 Ar 作缓冲气体时, 它的分压逐渐增至 10 大气压, 仍未达到振荡阈值, 当用 Ne 作缓冲气体时, 将它的分压升高至 12 大气压, 才得到很微弱的激光输出 (在图5右边用点线示出), 由此看来还是 Ar 作为缓冲气体效果最好。

### 1) Ar 对激光的影响

缓冲气体 Ar 对激光的影响类似于它对荧光的影响。从图6(a)可以看出, 尽管在 Ar 气压低于 6 大气压时, 激光输出强度随 Ar 气压变化很大, 但分压大于 6 大气压之后趋于饱和状态。图6(b)中给出 Ar 气体为 6 大气压、8 大气压与 10 大气压的脉冲波形, 它们差不多是一样大小的, 出现的微小差别经鉴定是 REB 泵浦脉冲间的起伏所造成的。值得注意的是, 对应于 Ar 的任何分压值, 激光脉冲波形的宽度也保持不变, 且起振和猝灭



(a) 强度



(b) 波形

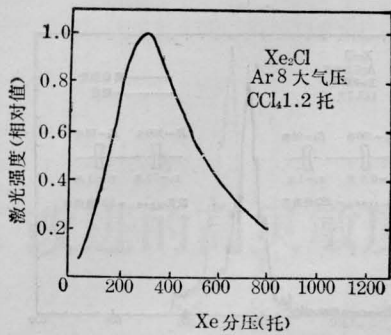
图6 Ar 对 Xe<sub>2</sub>Cl 激光的影响

的时刻都一致, 仅仅幅值发生变化而已。这一点也与荧光观测的结果一致。这说明在一定条件下, Ar 缓冲气体对激光的作用只起数量方面的作用, 而不起质的决定性影响, 这与它对 Xe<sub>2</sub>Cl\* 的猝灭作用特别小有关联。

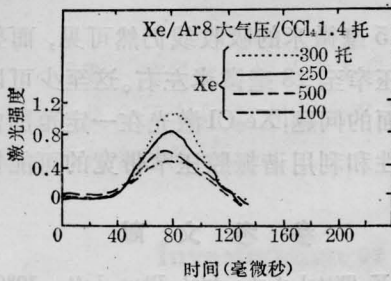
### 2) Xe 对激光的影响

激光输出与 Xe 分压有密切关系。当 REB 泵浦混合气体 (Ar+Xe+CCl<sub>4</sub>) 时, 动力学的研究<sup>[3]</sup>表明, Xe 的存在对形成 Xe<sub>2</sub>Cl\* 及其粒子数的多少起关键作用, 而且它对 Xe<sub>2</sub>Cl\* 寿命的影响也是十分重要的, 由于 Xe 对 Xe<sub>2</sub>Cl 的猝灭常数  $K_{Xe} < 1 \times 10^{-13}$  厘米<sup>3</sup>·秒<sup>-1</sup> 比 CCl<sub>4</sub> 的相应常数  $K_{CCl_4} \sim 5 \times 10^{-10}$  厘米<sup>3</sup>·秒<sup>-1</sup> 小三个数量级, 而 Xe 的浓度 (~10<sup>2</sup> 托) 比 CCl<sub>4</sub> 的浓度 (~1 托) 只大两个数量级, 所以 Xe 对 Xe<sub>2</sub>Cl 的猝灭作用远远小于 CCl<sub>4</sub> 的猝灭作用。

图7(a)示出 Xe 为 300 托左右时, Xe<sub>2</sub>Cl 激光强度呈现显著的峰值, 这一点和图7(b)



(a) 强度



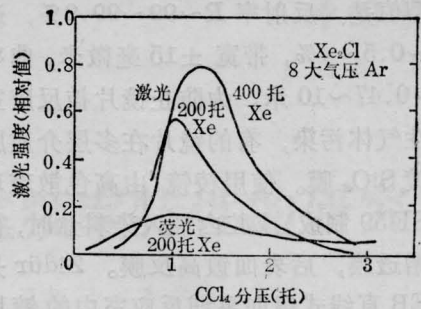
(b) 波形

图7 Xe对Xe<sub>2</sub>Cl激光的影响

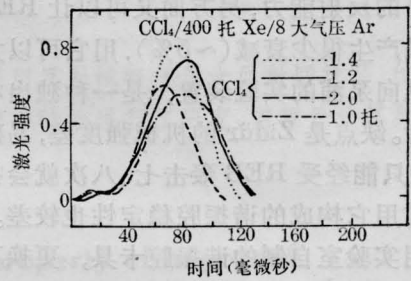
中波形的变化是一致的。当Xe分压超过300托时,激光强度急剧下降,可能是随着Xe粒子浓度增加,大量伴生的Xe\*亚稳态粒子吸收了部分Xe<sub>2</sub>Cl\*激光辐射跃迁到高Rydberg态去所引起的。当Xe分压低于300托时,则由XeCl\*形成Xe<sub>2</sub>Cl\*的通道没有充分发挥作用,造成Xe<sub>2</sub>Cl\*粒子数不足引起光强下降。有趣的是当Xe分压减至100托时,尽管激光光强下降严重,可是激光随时间变化的波形宽度仍保持不变(图7(b))。

### 3) CCl<sub>4</sub>对激光的影响

卤化物施主CCl<sub>4</sub>对Xe<sub>2</sub>Cl激光有着最为强烈的影响。在图8(a)中绘出了Xe分压为200托、400托、Ar保持8大气压时的激光强度随CCl<sub>4</sub>分压变化的曲线,图中也同时画出荧光曲线,以便比较分析。保持Xe气压为200托时,激光变化曲线的峰值位置和荧光曲线的峰相对应;若保持Xe气压为400托,激光曲线的峰值向右移动,CCl<sub>4</sub>的最佳分压变为1.4托。图8(b)的波形簇说明,因



(a) 强度



(b) 波形

图8 CCl<sub>4</sub>对Xe<sub>2</sub>Cl激光的影响

为CCl<sub>4</sub>浓度不同,除了引起激光强度变化外,脉冲波形的宽度也发生变化,起始振荡时间基本不变,而终止振荡时间随CCl<sub>4</sub>浓度增加而提前,这反映了CCl<sub>4</sub>粒子的主要猝灭作用。

综上所述,我们把Xe<sub>2</sub>Cl激光的各个参数小结于表2。

表2 Xe<sub>2</sub>Cl激光资料小结

混合气体成分	Ar	Xe	CCl <sub>4</sub>
最高光强气压	8 大气压	250 托	~1.2 托
Xe <sub>2</sub> Cl 激光参数			
中心波长λ~	518 毫微米		
带宽Δλ~	20 毫微米		
相对RFB延迟~	35 毫微秒		
脉冲波形宽度(FWHM)~	36 毫微秒		

### 谐振腔的选择

对于低增益激活介质而言,谐振腔的选择是至关重要的,为了获得满意的激光振荡,我们曾选用多种谐振腔结构。谐振腔镜片参

数的典型值是：反射率  $R \sim 99 \sim 99.9\%$ ，透  
 过率  $T \sim 0.5 \sim 4\%$ ，带宽  $\pm 15$  毫微米，曲率  
 半径  $r \sim 0.47 \sim 10$  米。为防止镜片被反应室  
 内腐蚀性气体污染，有的镜片在多层介质膜  
 的表面镀  $\text{SiO}_2$  膜。使用棱镜(由高色散玻璃  
 Schott SF59 制成)或腔内插入染料盒时，前  
 表面镀增透膜，后表面镀高反膜。Zidür 是  
 用于 REB 直线式纵向泵浦反应室内的镀膜  
 反射镜片(厚度  $\sim 0.3$  毫米)，它一方面对可见  
 光有很高的反射能力，另一方面又可以让 REB  
 穿过而只产生很少衰减( $\sim 5\%$ )，用它可以大大  
 简化纵向泵浦的实验装置，是一种独出心  
 裁的设计。缺点是 Zidür 的机械强度差，易破  
 碎。一般只能经受 REB 轰击七、八次就会损  
 坏。同时用它构成的谐振腔稳定性也较差。

利用实验室自制的谐振腔卡具，更换不  
 同的镜片，我们得到了图 9 的曲线，其中点线  
 代表使用一般谐振腔的实验结果，此谐振腔  
 镜片反射率  $R$  最大值对应于波长  $\lambda \sim 520$  毫  
 微米，镜片曲率半径  $r_1 \sim 10$  米， $r_2 \sim 1$  米。两  
 个主要峰值之间是对应于 514.5 毫微米的强  
 吸收线。当改用高  $Q$  腔 ( $R_1 \sim 100\%$ ， $R_2 \sim$   
 $98\%$ ， $r_1 \sim 0.5$  米， $r_2 \sim 1$  米)且  $\lambda(R_{\max}) \sim 490$   
 毫微米(对应于荧光谱中心波长)，我们得到了  
 图 9 中实线所示的单峰曲线。峰值对应于 509  
 毫微米，对应于 518 毫微米的峰被抑制住

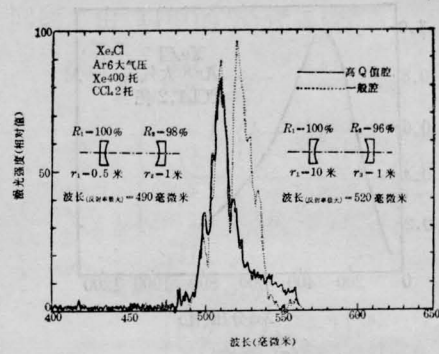


图 9  $\text{Xe}_2\text{Cl}$  激光的调谐特性和带宽压缩

了，514.5 毫微米的吸收线仍然可见，而整个  
 带宽也压窄至 13 毫微米左右。这至少可以说明  
 两方面的问题： $\text{Xe}_2\text{Cl}$  激光在一定范围内的  
 可调谐性和利用谐振腔压窄带宽的可能性。

### 参 考 文 献

- [1] F. K. Tittel *et al.*; *Appl. Phys. Lett.*, 1980, **36**, 405~407.
- [2] 郭振华等;《激光与红外》,1983, No. 8, 32~36.
- [3] 郭振华等;《中国激光》,1983, **10**, No. 10, 685.
- [4] E. Zamir *et al.*; *IEEE J. Quant. Electr.*, 1979, **QE-15**, 281~288.
- [5] K. Y. Tang *et al.*; 32nd Gaseous Electronics Conference, Pittsburg, Pennsylvania, USA, Oct. 9, 1979.
- [6] 郭振华等;《激光》,1982, **9**, No. 9, 439~448.
- [7] F. K. Tittel *et al.*; *SPIE Proceedings* p. 671~677, 1981, also *Electron-Optics/Lasers'80 Meeting*, Boston MA, USA, Nov. 1980.

(上接第 493 页)

又用一般结构的光声室进行了实验，将被测  
 样品直接放在光声室中，而图 1 样品的位置  
 上放上一块 NaCl 做为入射窗，实验曲线如  
 图 4 中最下部一条曲线所示。该曲线斜率与  
 我们用图 1 结构得到的理论曲线和实验曲线  
 斜率相同，但其幅度却比我们上述结构的实  
 验值要小。

我们还用压电陶瓷作为接收器对几种不  
 同厚度的样品进行了测试。图 5 只画出了厚  
 度为 0.343 毫米单晶硅样品的实验结果。从  
 图中可以看到，其实验曲线也与压电法的理

论曲线相符合<sup>[7]</sup>。

### 参 考 文 献

- [1] A. Rosenwaig, A. Gersho; *J. Appl. Phys.*, 1976, **47**, 64.
- [2] Nils C. Fernelius; *J. Appl. Phys.*, 1981, **52**, 6285.
- [3] E. M. 沃伦科娃等著,北京玻璃研究所译;《红外光学材料手册》,1973 年。
- [4] 王桂芬等;《半导体学报》,1982, **3**, 230.
- [5] Nils C. Fernelius; *Appl. Opt.*, 1979, **18**, 1784.
- [6] A. Rosenwaig; *J. Appl. Phys.*, 1978, **49**, 2905.
- [7] Warren Jackson, Nabil M. Amer; *J. Appl. Phys.*, 1980, **51**, 3343.