

Cs^{2+}F^- 离子准分子的相对论电子束激励

邢 达

(华南师范大学激光与生命科学研究所以, 广州 510631)

提要 由高能电子束激发成功地观测到来自内壳层电离态 Cs^{2+}F^- (与 XeF 具有等电子序的结构) 的两个离子准分子发射带。其中心在 185 nm 的强发射带被标记为来自 Cs^{2+}F^- 离子准分子的 $B-X$ 带束缚-自由跃迁, 152 nm 附近的发射带是来自于 Cs^{2+}F^- 的 $D-X$ 带连续辐射。

关键词 电子束激发, 离子准分子, 内壳层电离态

1 引 言

当前如何高效率地产生 VUV 和 XUV 相干辐射是量子电子学的一个重要课题。到目前为止, 稀有气体卤化物准分子仍然是紫外区效率最高的激光增益介质^[1]。为了扩展这种类型的激光到更短的波长区域, 一种与稀有气体卤化物准分子具有等电子序的离子型准分子被建议作为可能的 VUV 和 XUV 激光介质^[2], 另外一些类似系统在 Basov 等人的论文中也被讨论过。最近, 使用离子束激励和使用激光等离子体软 X 射线泵浦已经观察到了 Cs^{2+}F^- 离子准分子的发射光谱。这个准分子发射带被建议是来自内壳层电离态和离子基态之间的跃迁^[3,4]。关于 $(\text{RbF})^+$ 离子准分子的一个 ab initio 计算也被本文作者报道了^[5]。

然而, 实现这种系统的激光振荡, 要求有一个高的上能级反转密度。这很可能会利用大电流相对论电子束泵浦来实现。作为发展这种真空紫外区域的离子准分子激光器基本的一步, 我们进行了电子束泵浦的 Cs^{2+}F^- 离子准分子的实验观察。

图 1 给出一个定性的 $(\text{CsF})^+$ 的势能曲线, 此势能曲线参考了 Rittner 势的模型计算和关于 $(\text{RbF})^+$ 的 ab initio 计算结果^[5]。

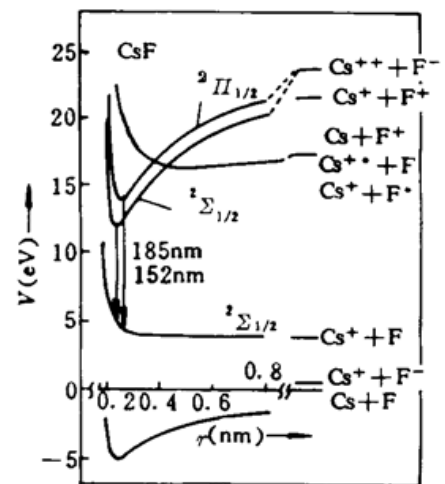


Fig. 1 A qualitative potential diagram of $(\text{CsF})^+$ molecule (referred to refs. 4 and 5). The asymptotic states of Cs^++F^- are located higher than the minima of the Cs^{2+}F^- bound states

2 实验装置

实验中使用的装置如图 2 所示。电子束由 Febetron 706(美国 HP)提供,其电子束二极管是一个用天鹅绒阴极改装的动态管^[6]。此装置可提供一个峰值电流为 4.5 kA,电子束直径为 2.0 cm,脉冲峰值半宽度为 3 ns,以及电子能量为 500 keV 的电子束流。此电子束流被一个轴向外加的 0.15 T 的均匀磁场约束,穿过阳极膜以及一个 15 cm 长的低压氦气漂移缓冲区,进入一个保持高温 CsF 蒸气的热管炉。此热管炉与漂移缓冲区(drifting section)之间被 Kapton 膜(CCK 膜)所隔离。约束磁场的均匀度小于 2%。

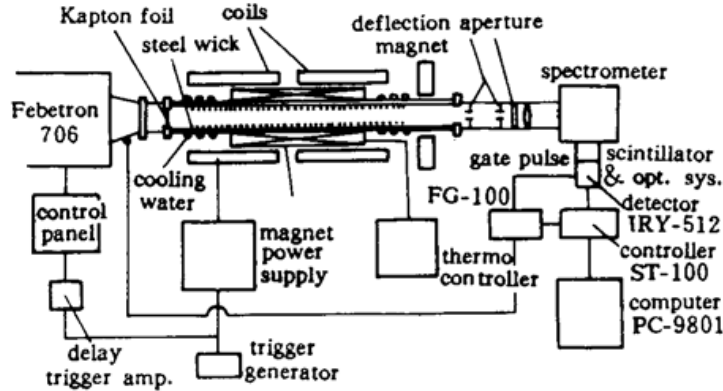


Fig. 2 Schematic diagram of the experimental apparatus

热管炉直径为 4.5 cm,总长为 120 cm,中间部分是一个由可移动型冷却体的位置所决定的大约 60 cm 长的激活区。经过 24 h 烘干后 CsF 被加入热管炉,再经过在 300 °C 下多次的纯化(以除去低熔点不纯物)后,热管炉被保持在 700~900 °C 的操作温度之间。在此温度范围内 CsF 的饱和蒸气压是 1~35 mbar^[7]。在实验中,热管炉被交替地充以不同的缓冲气体 He, Ne, Ar 或 Kr。

来自热管炉激活区的荧光被一个焦距 10 cm 的 LiF 透镜收集,并聚焦在 0.2 m 真空单色仪的入射狭缝上。光谱的分析是用一个带有增强型 CCD 探测器 IRY-512 (Princeton Instruments, Inc.)的多道光谱分析仪进行。其中,单色仪的出射狭缝被涂有 NaI 的荧光转换板所代替。真空紫外光谱经荧光转换至可见谱段,荧光板上的光谱图像被一个高质量的光学成像系统成像在增强型 CCD 的像面上。当使用 1200 条/mm 的光栅时,此系统的光谱分辨能力是每道 0.12 nm。

电子束的束参数由一个真空法拉第探测器和彩色热敏胶膜来监测。大约有 50% 的初始电子束流被约束进热管炉。在气体中观察到的能量损失与 Monte Carlo 计算所预言的结果非常接近^[8]。

3 实验结果和讨论

图 3 (a) 给出一个典型的在电子束激励的 CsF/He 混合蒸气中观察到的 VUV 发射光谱。He 缓冲气体的压力是 26.6 kPa,热管炉温度为 765 °C,此温度对应于 4 mbar 的 CsF 蒸气压。光谱给出一个中心在 185 nm,宽度从 170~190 nm 的强发射带和一个出现在 145~155 nm 之间,中心在 152 nm 的较弱发射带。根据较早的研究工作,这两个发射带是来自 Cs^2+F^- 离子的辐射。除此之外,一个在 157 nm 附近的弱的 F_2^+ 发射带以及一些原子和离子发射线也被观察

到了(来自 He^+ 和 C)。所观察到的光谱的主要性质,如峰值位置和结构,随实验条件没有明显变化,除在较高温度下连续光谱出现一些凹陷,这是由于 CsF 蒸气自吸收的缘故。在 185 nm 范围内的次峰结构可以认为是来自上能级的不同振动激发的贡献^[9]。荧光的基本线型和峰值位置与离子束激励以及激光等离子体激励的结果是一致的。

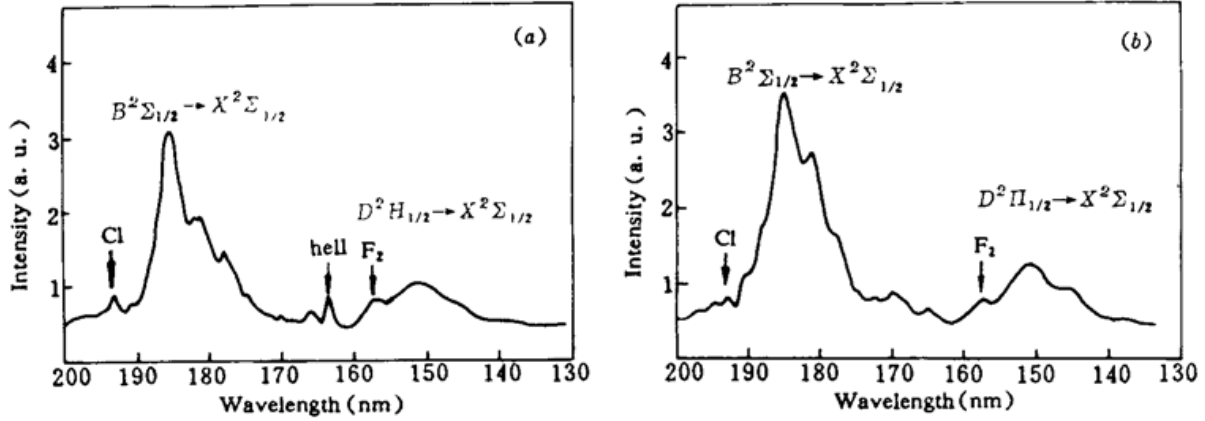


Fig. 3 Emission spectra from 140~190 nm for electron-beam-excited He/CsF (a) and Ne/CsF (b) mixtures.

Cell temperature: 765 °C. Buffer gas pressure: 26.6 kPa

在电子束激励 Ne/CsF 蒸气混合物的情况下,也观察到了两个 VUV 的辐射带〔见图 3(b)〕。事实上,在 Ne 缓冲气体的情况下,观察到了最强的 185 nm 和 152 nm 辐射,这非常类似于在稀有气体卤化物准分子激光器中加入 Ne 缓冲气体使得输出增加的现象。在同样的实验条件下,其发射光谱的谱带位置和形状与在 He 缓冲气体情况下观察到的相同。实验中,使用 Ar 作缓冲气体,产生了很弱的 Cs^+F^- 连续区同时伴随着很强的 ArF 准分子的 193 nm 辐射。使用碱卤化物作施主产生 ArF 准分子的受激发射的实验,至今还未有过报道,其反应动力学过程非常有趣,有待于仔细研究。进一步使用 Kr 作缓冲气体,在相同光谱范围内,几乎没有观察到任何的连续发射,然而,在 248 nm 处观察到了一个强的 KrF 准分子发射。

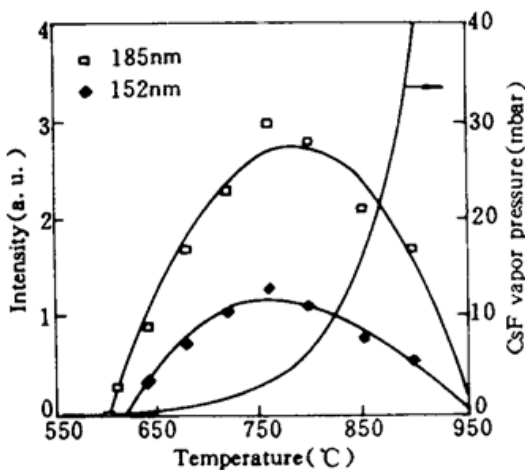


Fig. 4 Observed temperature dependence of the 185 nm and 152 nm ionic excimer fluorescences

图 4 给出了 185 nm 和 152 nm 谱带发射强度的温度依赖性,其观察范围在 600~900 °C 之间,对应 CsF 的饱和蒸气压是 0.3~35 mbar。在较低的温度范围没有出现 VUV 辐射。光谱的最大值辐射强度出现在 765 °C 时,这对应于 4 mbar 的 CsF 蒸气压。继续增加 CsF 的密度,引起 CsF 蒸气本身的辐射吸收增加,直到 CsF 蒸气压达到 35 mbar 以上,发射光谱仍有一个可观察到的强度。这一点与激光等离子体激励的实验结果有明显的不同(后者在 10 mbar 以上已观察不到信号),这可能是由于在此激励方式下,激活区基本与吸收区的长度相等,而激光等离子体激励情况下,

吸收区远远大于激活区的长度。

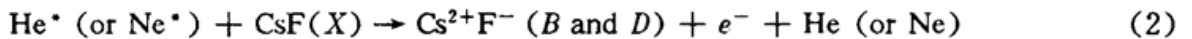
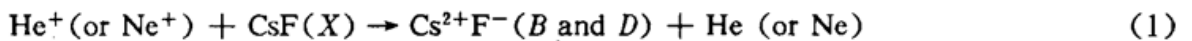
在电子束激励条件下,185 nm 和 152 nm 发射带的强度表现了类似的 CsF 蒸气压力依赖性。

参照先前的一些理论研究结果^[5,9],所观察到的向短波区扩散(blue-shaded)的 170~190 nm 辐射带,可以标记为束缚-自由 Cs²⁺F⁻ 2-1(即 B-X 带)连续辐射。目前得到的光谱可能存在着很多从 2 态各振动能级跃迁的迭加。这反映了上能级在电子束泵浦下的无选择性激发。

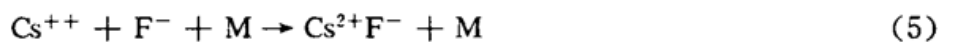
中心在 152 nm 的第二连续区可能归因于 Cs²⁺F⁻ 的 D-X 带束缚-自由跃迁。在稀有气体卤化物分子当中,D-X 和 B-X 跃迁的能量差稍小于两个渐近态之间的能量差。而在 Cs²⁺ 的情况下,²P_{3/2} 和²P_{1/2} 态之间的能量差是 1.72 eV^[10]。如果 152 nm 处的第二个连续区被标识为 Cs²⁺F⁻ 的 D-X 跃迁,它与 B-X 跃迁的能量差是 1.44 eV,这与期望值是非常一致的。

C-A 跃迁没有观测到,原因可能是此跃迁有一个较宽的光谱分布和较小的跃迁几率,这是根据我们对 Rb²⁺F⁻ 理论计算的结果所推测的。

事实上,两个连续区仅是当 He 或 Ne 作缓冲气体时才明显出现。这表明它们的主要激励途径是经由一个与稀有气体反应的过程。在当前的实验中,下面的电荷转移反应和 Penning 电离反应过程是主要的上能级贡献过程



在放电余辉的初始阶段,泵浦能量主要是储存在 He 离子当中。所以离子分子反应(1)可能在第一阶段具有较大的几率。大约在 100 ns 以后,能量主要是由中性粒子,如亚稳态的稀有气体携带,此时第二个反应式(2)变成主要过程,并且这个反应有一个长的寿命。对于 Ar 或 He 气体,储存的能量不足以激发 CsF 分子形成离子准分子态,实验中所出现的弱连续区可能是经由 Cs²⁺ 和 F⁻ 的复合,而 Cs²⁺ 和 F⁻ 是由 CsF 分子经高能电子碰撞解离产生的。另一个对连续区的贡献可能是 Harpooning 反应,这非常类似于电激励稀有气体卤化物中性准分子系统中的一些反应过程。一些可能的过程如下



M 可以是一个稀有气体原子或 CsF 分子。由 He²⁺ 导致的激发转移^[11]是不重要的,这是由于在低气压条件下,而在高气压下,这一过程应该是非常有效的。

4 结 论

由电子束激发成功地观测到来自内壳层电离态 Cs²⁺F⁻ 的两个离子准分子发射带(Cs²⁺F⁻ 与中性准分子 XeF 具有等电子序的结构)。中心在 185 nm 的强发射带被标记为来自 Cs²⁺F⁻ 离子准分子的 B-X 带束缚-自由跃迁。152 nm 附近的发射带是来自于 Cs²⁺F⁻ 的 D-X 带连续辐射。

参 考 文 献

- 1 C. K. Rhodes. Excimer Lasers. 2nd ed. Berlin, West Germany, Springer-Verlag, 1984

- 2 R. Sauerbrey, H. Langhoff. Excimer ions as possible candidates for VUV and XUV lasers. *IEEE J. Quant. Electr.*, 1985, QE-21 : 179
- 3 F. Steigerwald, H. Langhoff, W. Hammer. Observation of ionic excimer states in the alkali halides. *J. Chem. Phys.*, 1988, 88 : 7376
- 4 L. Frey, S. Kubodera, P. J. Wisoff *et al.*. Spectroscopy and kinetics of the ionic cesium fluoride excimer excited by a laser-produced plasma. *J. Opt. Soc. Am. B*, 1989, 6 : 1529
- 5 D. Xing, K. Ueda, H. Takuma. Electronic states of the ionic rubidium fluoride excimer. *Chem. Phys. Lett.*, 1989, 163 : 193
- 6 Q. Zhang, D. Xing, K. Ueda *et al.*. Pulsed relativistic electron beam of 3 nm produced by a velvet cathode. *Rev. Sci. Instrum.*, 1991, 62 : 1658
- 7 N. Stake, ed. Vacuum Handbook, Jpn. Vac. Tech. K. K., 1978. 112
- 8 R. Sauerbrey, H. Langhoff. Lasing in an *e* beam pumped Ar-N₂-mixture at 406 nm. *Appl. Phys.*, 1980, 22 : 399
- 9 D. Xing, K. Ueda, H. Takuma. Vacuum ultraviolet emissions from alkali-halide ionic excimer (CsF)⁺ by electron beam excitation. *Jpn. J. Appl. Phys.*, 1992, 31 : 2440
- 10 C. E. Moore. Atomic Energy Levels, Vol. 3. U. S. Government Printing Office, Washington, D. C., 1958
- 11 T. T. Yang, V. T. Gyls, D. G. Harris. Fluorescence from CsF ionic excimers excited by an electron beam. *J. Opt. Soc. Am. B*, 1992, 9 : 1272

Electron Beam Excitation of Cesium Fluoride Ionic Excimer

Xing Da

(Laser and Life Science Institute, South China Normal University, Guangzhou 510631)

Abstract The vacuum ultraviolet (VUV) fluorescence from an ionic alkali-halide excimer was observed by electron beam excitation. A gas mixture of helium or neon with a hot vapor of CsF was excited to obtain two diffuse emission bands centered at 185 and 152 nm from Cs²⁺F⁻, which is isoelectronic to XeF excimer.

Key words electron beam excitation, ionic excimer, autoionization state