

氟化氦真空紫外辐射的观察*

周 赤 王 骥 马祖光

(哈尔滨工业大学光电子技术研究所, 哈尔滨 150001)

提要 实验观察到一种新的离子准分子——氟化氦离子准分子产生的真空紫外连续谱辐射, 其峰值位于 148 nm 处。实验结果与理论计算值符合很好。

关键词 离子准分子, 真空紫外辐射, 激光等离子体

1 引言

真空紫外(VUV)和极紫外(XUV)激光研究一直是激光科学中的一个前沿性课题。这个波段的激光在 VUV/XUV 激光光谱、光解离、表面科学、材料科学以及生物科学中有着广泛的应用。到目前为止, 在 100 nm 以下的谱段内, 已采用强激光打靶产生的等离子体, 通过电子碰撞或三体复合机制, 成功地获得了软 X 射线激光。但在 100~200 nm 的区域内, 空白仍较多, 只有几种稀有气体和稀有气体卤化物准分子以及氟分子能产生效率较高的激光。

利用离子准分子产生 VUV/XUV 激光的设想由 Sauerbrey 和 Langhoff^[1] 及 Basov 等^[2,3] 分别于 1985 年首次提出。其主要思想是利用与中性分子或准分子具有等电子序结构的非中性准分子, 产生类似的电子交换跃迁, 其辐射波长可以短到 20 nm。到目前为止, 已经利用重离子束、相对论电子束、激光等离子体软 X 射线以及快放电等激励手段, 观察到了十几种离子准分子的跃迁^[4~10]。主要有稀有气体离子准分子、稀有气体-碱金属离子准分子、碱金属卤化物离子准分子等。最近, 在这种离子准分子系统上已观察到增益和激光振荡^[11,12]。

稀有气体卤化物离子准分子是 Sauerbrey 和 Langhoff 在 1985 年就曾预言到了的一种离子准分子。但由于其形成条件比较苛刻, 一直在实验上未能观察到。这里报道利用激光等离子体软 X 射线(LPX)为泵浦源观察到的氟化氦离子准分子真空紫外辐射。

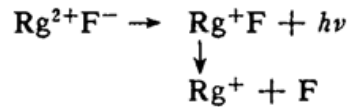
2 原理

离子准分子的形成是建立在等电子序结构概念上的。在卤素分子 Y^+X^- 中, 一般是以离子键结合的。如果以与一价卤素离子 Y^+ 具有等电子序的稀有气体二价离子 Rg^{2+} 取代 Y^+ 时, 同样有可能形成离子键结合的离子性准分子 $Rg^{2+}X^-$ 。根据文献[13]分析, 稀有气体氟化物离子准分子上能级 $Rg^{2+} (^3P) + F^- (^1S)$ 可能构成的态是 $^3\Sigma$ 和 $^3\Pi$, 而下能级 $Rg^{2+} (^2P) + F$

* 国家自然科学基金和 863 高技术激光技术领域资助项目。

收稿日期: 1995年6月16日; 收到修改稿日期: 1995年8月15日

(²P) 可能形成^{1,3}Σ, ^{1,3}Π 和¹Δ 态。其电荷转换跃迁



可能发生于³Σ - ³Σ 和³Π - ³Π 态之间。中性异核卤素分子 Br⁺F⁻ 的 D³Π_g - A³Π_g 态间跃迁辐射波长为 354 nm, 而相应的与之等电子序的离子准分子 Kr²⁺F⁻ 的辐射波长应短得多(这就是用离子准分子可获更短波长的基本道理)。

Sauerbrey 和 Langhoff 曾在文献[1]中利用 Rittner 势模型计算了稀有气体氟化物离子准分子的势能曲线和跃迁参数。计算得到的 Kr²⁺F⁻ 离子准分子跃迁波长是 122 nm。为了提高计算精度, 我们利用量子化学从头计算法(ab initio)对 Rittner 势模型中的参数进行了校正。并利用修正后的 Rittner 势计算获得的 Kr²⁺F⁻ 离子准分子势能曲线和跃迁参数见图 1 和表 1^[13], 可以看到其辐射峰值波长在 152.7 nm 附近, 并具有连续谱特征。

Table 1 Theoretical result of transition parameters of ionic excimer Kr²⁺F⁻

Wavelength	Bandwidth	Lifetime	Stimulated emission cross section
152.7 nm	12.1 nm	0.45 ns	$2.36 \times 10^{-17} \text{ cm}^2$

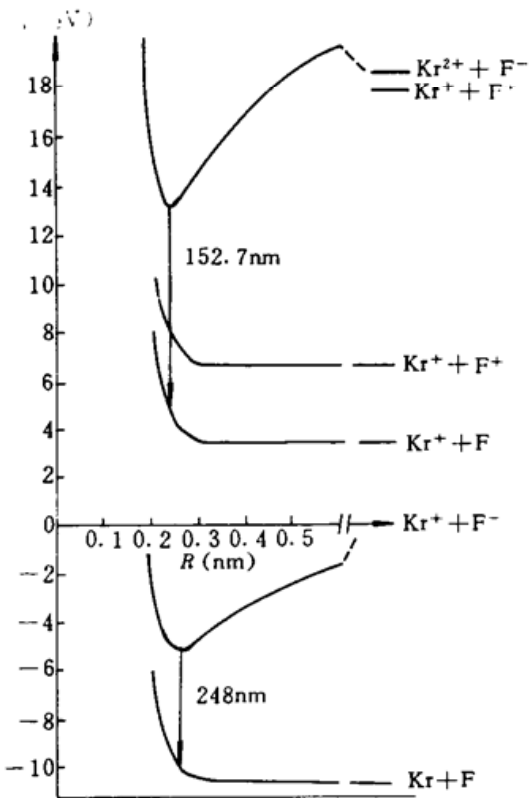


Fig. 1 Potential curves of Kr/F system

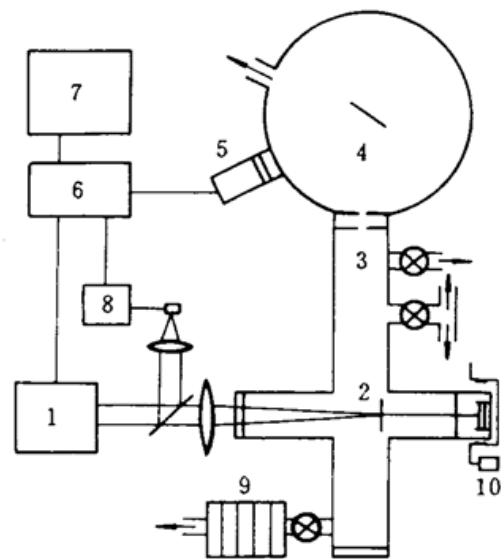


Fig. 2 Experimental setup

- 1: YAG laser; 2: Ta target; 3: LiF window;
4: monochromator; 5: scintillator/PMT; 6: Boxcar;
7: recorder; 8: optical switch; 9: gas filters; 10: motor

3 实 验

用激光打靶产生激光等离子体软 X 射线辐射(LPX)是一种研究短波长激光常用的激励源^[7~11]。本实验即采用 LPX 激励研究稀有气体氟化物离子准分子荧光辐射, 其装置如图 2 所示。一台调 Q Nd³⁺: YAG 激光器作为打靶驱动器, 经一组消像差透镜聚焦后打在一个真空室

内的金属钽靶上,产生激光等离子体。为使每个激光脉冲能打在靶上不同位置即每次打靶都提供一个新鲜的靶面,以便确保获 LPX 辐射的条件不变,钽靶是由一个外部电机带动的磁力拖动装置带动旋转,这种结构同时保持靶室内能够维持真空封闭状态。入射激光与靶面不是正交入射,而是有一小偏角,且不在靶面的中心,这是为了保证等离子体喷射尽量不喷到靶室的入

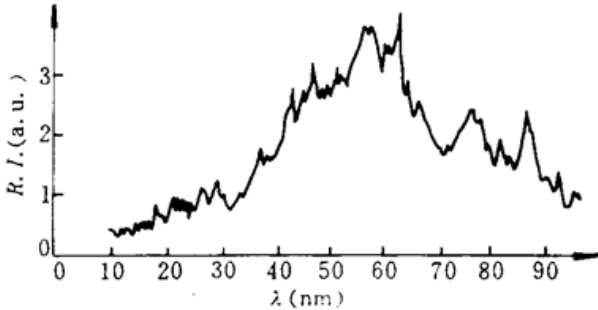


Fig. 3 Soft X-ray from laser produced plasma ($I = 4.9 \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$), R. I. = Relative Intensity

射窗口上,也保证靶面旋转起来后,每次打靶位置在变换(不在中心),其轨迹在靶面上画出一个圆。激光等离子体产生的软 X 射线泵浦周围的混合气体介质,以产生离子准分子。本实验中在 Ta 靶上的有效激光能量为 500 mJ,脉宽为 15 ns,焦斑直径为 0.3 mm,靶面上相应的激光功率密度为 $4.9 \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$,此时在本实验中测到的 LPX 谱的分布主要位于 20~70 nm 谱区(见图 3),其光子能量足以产生 Ar 或 Kr 的二次光电

离。LPX 或气体介质的荧光谱通过一个毛细管阵列输出窗或 LiF 窗片(截止波长 107 nm),由一台 0.5 m 真空紫外单色仪(Acton VN-515)色散分光,由一个加有闪烁体的光电倍增管探测。输出信号经 Boxcar 处理后记录仪记录。实验中的一个困难是在测量气体介质辐射时,如何避免 LPX 的干扰。在本实验中,干扰最大的是波长长于 100 nm 附近的一段。Frey 等人^[10]和我们的实验都发现在长度 100 nm 波长范围,功率密度在 10^{10} W/cm^2 左右的激光在 Ta 靶上产生的 LPX 辐射,将主要来自等离子体的复合过程。这种复合过程产生时间要比 20~70 nm 段的 LPX 谱的产生时间晚 200 ns 左右。因此,仔细选择 Boxcar 的取样门宽和时间延迟位置可以排除掉这种干扰,实验中 Boxcar 门宽选为 50 ns,并采用了一个光开关对 Boxcar 进行触发,以确保与激光脉冲的精确同步。

另一方面,由于 LPX 的泵浦区是在等离子体外围的一定区域,实验中将单色仪的入射狭缝光轴与等离子体中心距离拉开 15 mm 左右,以提高气体荧光信号强度并降低 LPX 干扰,进而提高了信噪比。

以上两种技术,便可总结为采用时间分离和空间分离技术,提高了信噪比,保证了荧光谱的观测。

4 结果与讨论

当靶室内充以 Kr 0.4 kPa, He 1.37 kPa, NF_3 0.23 kPa 的混合气体时,利用前述实验装置和实验条件在 LPX 激励下,在 142~150 nm 波段出现了一个连续谱辐射[图 4(a)]。为判断其来源,在同样的泵浦条件下,实验中对靶室为真空状态[图 4(b)]或只充以 Kr 气 0.4 kPa [图 4(c)]

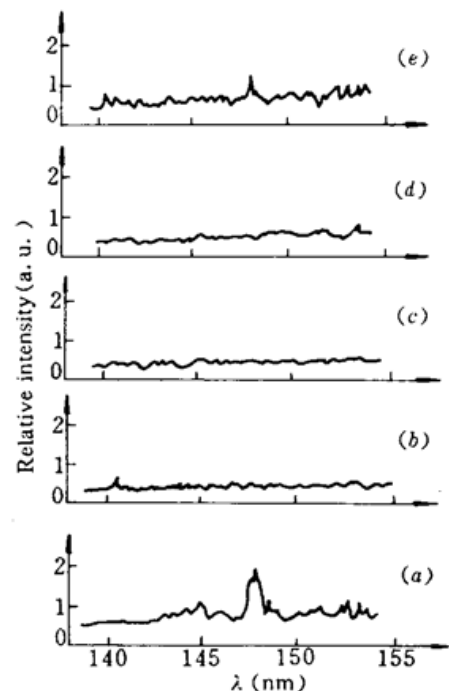


Fig. 4 Emission spectra from ionic excimer Kr^{2+}F^-

以及只充 He 1.37 kPa, NF_3 0.23 kPa [图 4(d)] 混合气体时 LPX 激励辐射信号分别进行了测量, 结果没有与图 4(a) 相类似的连续谱。而重新充以 Kr/Hd/ NF_3 混合气体时该谱又出现。这说明图 4(a) 辐射应该是 Kr 与 NF_3 混合气体受到激励后产生的, 这种混合气体, 如果产生 Kr^+ 的一价离子, 它将可能会产生 Kr^+F^- 辐射, 而一般 Kr^+F^- 辐射波长是 248 nm, 而对产生 Kr^{3+} 所需能量将高得多, 在本实验中, 获得的 LPX 辐射主要位于 20~70 nm 区, 是没有足够高能量, 电离 Kr 而获得 Kr^{3+} 的, 因此可以说在混合气体中获得的辐射谱, 较大的可能应是与 Kr^{2+} 相联系的辐射过程, 单纯 Kr^{2+} 辐射应是线状谱获得的连续谱应对应分子的电子态跃迁。又根据理论计算的结果, 离子准分子 Kr^{2+}F^- 的跃迁波长为 152.7 nm, 与测量到的 148 nm 很接近。基于此, 可以推断该辐射来源于离子准分子 Kr^{2+}F^- 的跃迁。当以 F_2 代替 NF_3 气体时, 可以观察到有类似的连续谱辐射出现 [图 4(e)], 这进一步证实了上面的推断。

从 Kr^{2+}F^- 的辐射谱 [图 4(a)] 中可以看出, 在 148 nm 左右有一个较强的峰值; 而在短波长方向上有一个较弱的连续带, 其中心波长位于 145 nm 附近。这个较弱的连续带可以归结为来自上能级高振动态的跃迁。根据 Franck-Condon 原理, 其波长应较短且强度较弱, 实际观察到的结果与之相符。

在更高的气压下, Kr^{2+}F^- 辐射很快消失, 这很可能是由于高压下的介质吸收和猝灭效应造成的。不同气压条件下的实验结果见另文^[4]。

从实验结果来看, 特别与我们利用经过 ab initio 方法修正过的 Rittner 势所计算出的 Kr^{2+}F^- 离子准分子辐射波长 152.7 nm 相比是比较符合的, 也有助于我们对该谱来源是 Kr^{2+}F^- 的判断, 并可以看到, 其计算精度大大高于 Sauerbrey 等人利用 Rittner 势所估算出的辐射波长 122 nm, 实验证明了我们理论计算工作的精度更高一些。

5 结 论

利用 LPX 为激励源, 在实验中观察到了一种新的离子准分子 Kr^{2+}F^- 在 148 nm 左右的连续谱真空紫外辐射, 其结果与利用修正的 Rittner 势计算的理论值符合较好, 进而验证了理论工作的可靠性。

这种离子准分子具有辐射波长短、连续谱辐射、激发阈值低及饱和强度高(估计为 10 MW/cm² 以上)^[1]的特点, 很有可能发展成为可调谐高功率短波长激光介质。

参 考 文 献

- 1 R. Sauerbrey, H. Langhoff. Excimer ions as possible candidates for VUV and XUV lasers. *IEEE J. Quant. Electr.*, 1985, QE-21(3): 179
- 2 N. G. Basov, M. G. Voitik, V. S. Zuev et al.. Feasibility of stimulated emission of radiation from ionic heteronuclear molecules. I. Spectroscopy. *Sov. J. Quant. Electr.*, 1985, 15(11): 1455
- 3 N. G. Basov, M. G. Voitik, V. S. Zuev et al.. Feasibility of stimulated emission of radiation from ionic heteronuclear molecules. I. Kinetics. *Sov. J. Quant. Electr.*, 1985, 15(11): 1461
- 4 F. Steigerwald, F. Emmert, H. Langhoff et al.. Observation of ionic excimer state in CsF^+ . *Opt. Commun.*, 1985, 56(4): 240
- 5 F. Steigerwald, H. Langhoff. Observation of ionic excimer states in the alkali halides. *J. Chem. Phys.*, 1988, 88(12): 7376
- 6 M. Schumann, H. Langhoff. The production kinetics for rare gas alkali ions. *J. Chem. Phys.*, 1989, 91(9): 5440

- 7 S. Kubodera, L. Frey, P. J. Wisoff *et al.*. Emission from ionic cesium fluoride excimers excited by a laser-produced plasma. *Opt. Lett.*, 1988, 13(6): 446
- 8 P. S. Millar, T. Peterson, G. Warwar *et al.*. Neutral and ionic molecules produced by reactive kinetics in a laser-produced plasma. *Opt. Lett.*, 1989, 14(3): 171
- 9 P. S. Millar, G. Warwar, P. J. Wisoff *et al.*. Electron beam excitation of raregas alkali ionic excimers. *Appl. Phys. Lett.*, 1989, 55(21): 2176
- 10 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.*, 1989, B6(8): 1529
- 11 Cs. Toth, J. F. Young, R. Sauerbrey. Optical gain in the ionic excimer $Cs^{2+}F^{-}$ excited by soft X-rays from a laser-produced plasma. *Opt. Lett.*, 1993, 18(24): 2120
- 12 Wang Qi, Liu Xuelong, Men Zhuowu *et al.*. Observation of laser oscillation in ionic excimer $[Ar^{2+}Ar]^{2+}$ pumped by relativistic electron beam [REB], CLEO '94, Anaheim, 1994. CTh I 44
- 13 王 骐, 姚 勇, 周 赤 等. 稀有气体卤化物离子准分子 XUV 跃迁参数计算. *强激光与粒子束*, 1992, 4(3): 397
- 14 王 骐, 周 赤, 马祖光 等. 氟化氮离子准分子真空紫外辐射及动力学过程. *光学学报*, 1996, 待发表

Observation of Vacuum Ultraviolet Radiation from Krypton Fluoride Ionic Excimer

Zhou Chi Wang Qi Ma Zuguang

(Institute of Opto-Electronics, Harbin Institute of Technology, Harbin 150001)

Abstract It is reported that VUV continuum from a new kind of ionic excimer, krypton fluoride ionic excimer, was observed in experiment. The peak of radiation is near 148 nm, which is coincident with the theoretical results.

Key words ionic excimer, VUV radiation, laser plasma