

# 准分子离子 $\text{Kr}^+ \text{Li}$ 的真空紫外发射及其 电子束激发动力学\*

邢 达 谭石慈

植田宪一

(华南师范大学激光生命科学研究所 广州 510631) (电气通信大学激光科学研究中心 日本东京 182)

**提要** 由相对论电子束激发稀有气体 Kr 和碱金属 Li 的混合蒸气, 观察到来自  $\text{Kr}^+ \text{Li}$  准分子离子的真空紫外发射带(147 nm 和 149 nm)。讨论了发射光谱的温度和气体密度依赖特性以及电子束激发的动力学过程。经理论计算, 两个发射带被分别标识为  $(\text{KrLi})^+$  离子准分子的  $2^1\Sigma^+ \rightarrow 1^1\Sigma^+$  和  $1^1\Pi \rightarrow 1^1\Sigma^+$  跃迁。另外, 在 Xe/Li 混合蒸气中观察到的 186 nm 和 189 nm 辐射带也被标识为准分子离子  $\text{Xe}^+ \text{Li}$  对应能级之间的跃迁。

**关键词**  $\text{Kr}^+ \text{Li}$  准分子离子, 真空紫外发射, 相对论电子束激发

## 1 引 言

高效率产生真空及极紫外相干辐射问题, 一直是量子电子学领域研究的重要课题。到目前为止, 稀有气体卤化物准分子激光器仍然是紫外区效率最高的激光源。此类激光介质是否可以向更短的波长扩展, 回答似乎是肯定的。碱金属-稀有气体离子准分子系统是一种相当可能产生真空紫外和极紫外激光的高效率介质。已经用多种抽运方法观测到这种产物<sup>[1~4]</sup>, 特别是已经由高效率的相对论电子束抽运观测到<sup>[5~7]</sup>。本文作为发展电子束抽运的实用型短波长激光器的进一步工作, 报道由相对论电子束激励  $(\text{KrLi})^+$  和  $(\text{XeLi})^+$  准分子离子的实验观察, 并讨论其形成的动力学过程。

## 2 实验装置

本研究中使用的实验装置类似于文献[5~7]中所描述的。电子束参数是峰值电流为 4.5 kA, 束流直径为 2.2 cm, 脉冲宽度为 3 ns(FWHM), 以及电子能量为 500 keV。此电子束流被轴向外加均匀磁场约束, 穿过钛阳极膜以及一个低压氦气缓冲区, 沿纵向进入高温 Li 蒸气的热池。此热池与氦气缓冲区之间使用 kapton 膜(CCK)隔离, 此膜的电子能量损失很小。热池总长为 80 cm, 其激活区长为 40 cm。来自激活区内的发射荧光由 LiF 透镜聚焦后进入真空紫外单色仪(ARC 公司)。在出射狭缝处使用荧光转换板, 荧光板上的光谱图被光学多道光谱分析仪记录和分析。实验中, 加在探测器上的取样脉冲宽度为 0.5  $\mu\text{s}$ 。

\* 国家杰出青年科学基金(69725009)和国家自然科学基金(69678030)资助项目。

收稿日期: 1998-10-30; 收到修改稿日期: 1998-12-28

实验前,热池经过严格的烘烤和真空除气 48 h,用烘蒸方法将约 15 g 的高纯 Li 送入热池内,经抽真空到  $10^{-6}$ ,充入 Kr 或 Xe,以及 Ar 的混合气体。Li 蒸气压被控制在 0.3~ 2.6 kPa 之间。碱金属蒸气的密度根据蒸气压曲线<sup>[8]</sup>和实测温度通过计算得出。

### 3 实验结果和讨论

图 1 给出一个在电子束激励的 Kr/Li 混合蒸气中观察到的 VUV 发射光谱。Kr 气体压力为 15 kPa,热池温度为 800°C,此温度对应一个 1.6 kPa 的 Li 饱和蒸气压。在 140~ 155 nm 之间,几个部分重叠的扩散发射峰形成了一个宽带的连续发射区,其中峰值在 144 nm 的发射带属于稀有气体  $\text{Kr}_2^*$  准分子的荧光发射。峰值在 147.5 nm 和 149.5 nm 的两个扩散发射带是本实验中新观测到的。波长大于 150 nm 的弱连续发射可能包含有离子的复合发光。实验中改变热池温度(Li 蒸气密度)和稀有气体种类研究了此发射光谱的性质,结果表明,此两个发射带强度密切依赖于 Li 蒸气和 Kr 气体的密度,特别是当 Li 和 Kr 不存在时,两个发射峰完全消失。根据较早的关于  $(\text{KrRb})^+$  和  $(\text{KrCs})^+$  准分子离子跃迁的研究结果<sup>[5,7]</sup>,相信此两个发射峰是来自于准分子离子  $\text{Kr}^+ \text{Li}$  的束缚-自由跃迁。

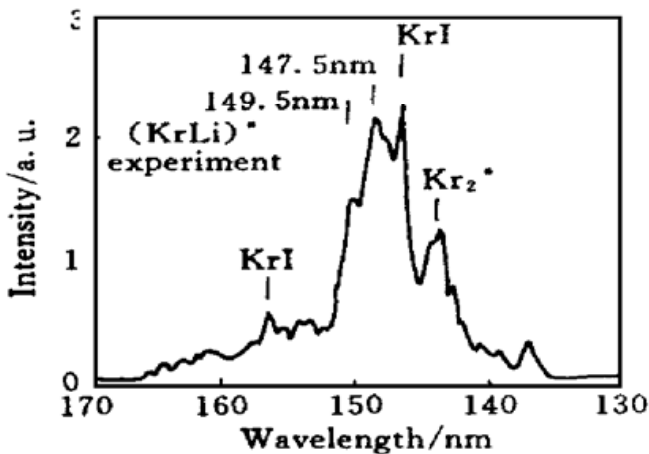


图 1 电子束激励的 Kr/Li 混合蒸气中观察到的 VUV 发射光谱

Kr 气体压力为 16 kPa,热池温度为 800°C

Fig. 1 The emission spectrum from electron-beam-excited Kr/Li mixture

The Kr gas pressure: 16 kPa, the cell temperature: 800°C

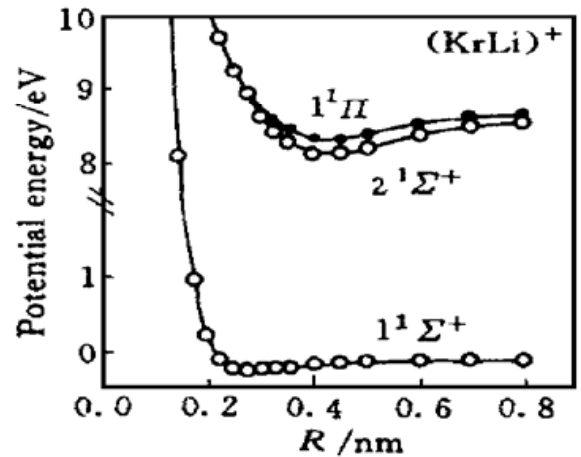


图 2  $(\text{KrLi})^+$  离子准分子较低位的 *ab initio* 势能曲线

Fig. 2 The *ab initio* potential of the low-lying states of the  $(\text{KrLi})^+$  ionic excimer

图 2 给出  $(\text{KrLi})^+$  准分子离子较低位的 *ab initio* 势能曲线<sup>[9]</sup>。其中基态  $1^1\Sigma^+$  是一个平衡点核间距很小的弱束缚态,其束缚能为 0.25 eV 左右。第一激发态  $2^1\Sigma^+$  和邻近的  $1^1\Pi$  态具有较大的核间距,且束缚能都远大于基态。处于此两态的粒子可以通过偶极跃迁回到基态的较高振动能级上,此种跃迁结构一般具有较大的跃迁几率。为了给出一个理论跃迁光谱,我们计算了  $(\text{KrLi})^+$  准分子离子  $2^1\Sigma^+ \rightarrow 1^1\Sigma^+$  和  $1^1\Pi \rightarrow 1^1\Sigma^+$  跃迁的 Franck-Condon 密度。计算中使用了改进的 *ab initio* 势能<sup>[9,10]</sup>。图 3 给出了  $(\text{KrLi})^+$  准分子离子  $2^1\Sigma^+ \rightarrow 1^1\Sigma^+$  和  $1^1\Pi \rightarrow 1^1\Sigma^+$  跃迁的模拟计算光谱,计算方法与系列论文[5~ 7]中所采用的方法相同。计算中分别考虑了上电子态的 10 个最低振动能级。理论光谱清楚地展现了  $2^1\Sigma^+ \rightarrow 1^1\Sigma^+$  跃迁有一个主峰在 155.5

nm, 并向短波方向扩散的准连续光谱结构。而对  $1^1\Pi \rightarrow 1^1\Sigma^+$  跃迁给出了中心在 152.5 nm 的一个类似的准连续谱带。这些理论结果与实验观察到的光谱在谱峰位置, 特别是光谱结构上是非常一致的。

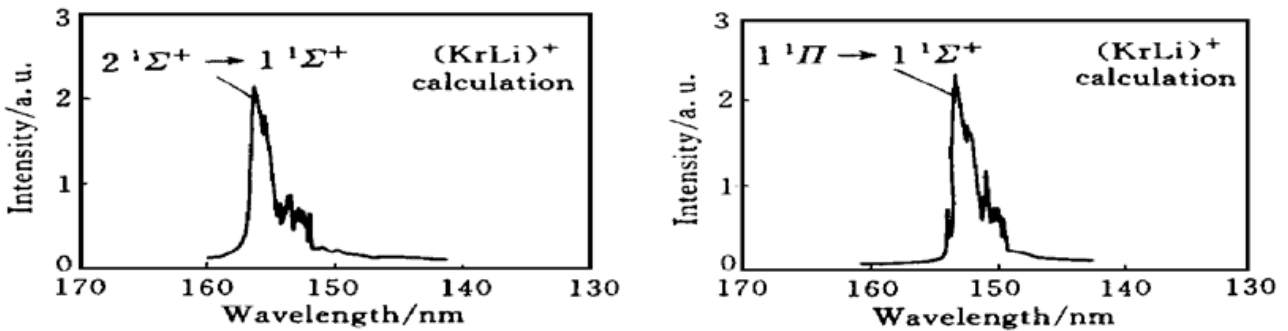


图 3 (KrLi)<sup>+</sup> 离子准分子跃迁的模拟计算光谱

Fig. 3 The simulated spectra for the transition of the (KrLi)<sup>+</sup> ionic excimer

比较图 1 和图 3 可以看到, 观察到的 149.5 nm 和 147.5 nm 发射可以分别标识为 (KrLi)<sup>+</sup> 准分子离子  $2^1\Sigma^+ \rightarrow 1^1\Sigma^+$  和  $1^1\Pi \rightarrow 1^1\Sigma^+$  跃迁。其峰值位置的偏差来自于理论势能的误差。

实验中也观察和研究了电子束激励 Xe/Li 混合蒸气的情况。图 4 给出在 165~ 205 nm 区域的一个典型的 Xe/Li 混合蒸气发射光谱。Xe 气体压力为 26 kPa, 热池温度为 800℃。在 185~ 195 nm 之间, 出现一个新的双峰扩散带, 峰值分别为 186 nm 和 189 nm。在 173 nm 处也出现了弱的稀有气体 Xe<sub>2</sub><sup>+</sup> 准分子的发射。当碱金属蒸气压力大于 0.7 kPa, Xe<sub>2</sub><sup>+</sup> 准分子荧光逐渐被淬灭。这与在 (XeRb)<sup>+</sup> 离子准分子实验<sup>[5]</sup> 中观察到的结果非常相似。

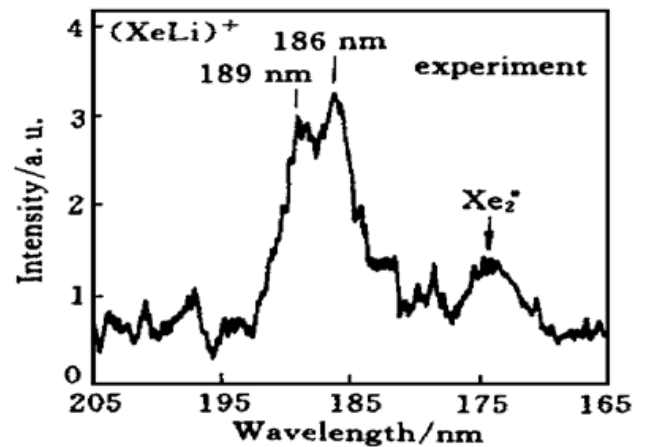
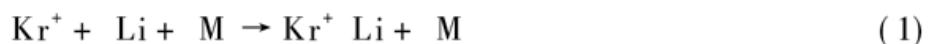


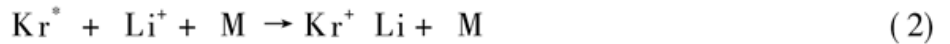
图 4 电子束激励的 Xe/Li 混合蒸气的发射光谱  
Xe 气体压力为 16 kPa, 热池温度为 800℃

Fig. 4 The emission spectrum from electron-beam-excited Xe/Li mixture

在电子束激发的稀有气体-碱金属混合蒸气中, 由电子直接激发形成离子准分子上能级的几率是非常小的, 这是由于稀有气体与碱金属原子之间只存在弱的范德瓦耳斯相互作用, 其束缚能一般小于 20 meV。电子束的激发主要是首先通过激发或电离稀有气体, 再以反应途径形成上能级。由于碱金属蒸气中的粒子种类复杂, 其反应途径可能是与碱金属原子或离子通过三体反应, 也可能是与碱金属分子或分子离子通过二体反应形成。在部分电离的 Li 蒸气中, 一般 Li<sub>2</sub> 密度占 2~ 5%, Li<sub>2</sub><sup>+</sup> 和 Li<sub>3</sub><sup>+</sup> 也有相当大的密度。但是由于解离能 (Li<sub>2</sub>,  $D = 1.036$  eV; Li<sub>2</sub><sup>+</sup>,  $D = 1.281$  eV) 都大于 Kr<sup>+</sup>Li 准分子的束缚能 (0.403 eV)<sup>[9]</sup>, 所以后者的形成几率应该是很小的。

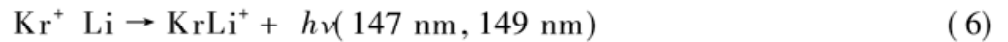
(KrLi)<sup>+</sup> 准分子离子上能级粒子形成的主要反应过程如下





其中, M 为稀有气体或碱金属原子。在激发的初始阶段, 由于  $\text{Kr}^+$  的密度较高, 反应过程(1)被认为是主要的, 在低气压条件下( $10^{17} \sim 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ ), 其同类过程(Na 蒸气中)的速率常数为  $(6 \sim 10) \times 10^{-28} \text{ cm}^6 \text{ s}^{-1}$ <sup>[11]</sup>, 这一数值远大于 Basov 等<sup>[12]</sup>最初的推测。在高气压下( $\sim 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ ), 此过程的速率常数略有下降, 对不同的碱金属原子其值在  $(1 \sim 5) \times 10^{-28} \text{ cm}^6 \text{ s}^{-1}$  之间<sup>[11]</sup>。由于  $\text{Kr}^*$  的寿命很长, 且在放电余辉中密度较高, 因此放电后期亚稳态激发渠道(2)被认为是主要过程。此过程从概念上类似于稀有气体-卤化物准分子形成中的三体 Harpooning 反应, 对于多数稀有气体-碱金属离子体系, 这个反应是放热的, 且具有较大速率常数  $(0.75 \sim 1) \times 10^{-28} \text{ cm}^6 \text{ s}^{-1}$ <sup>[13]</sup>。在当前较低工作气压下  $\text{Kr}_2^+$  的形成几率很小, 所以反应过程(3)被认为是不重要的。但是, 在高气压条件下此过程变为非常有效, 其速率常数可达到  $5 \times 10^{-9} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$ <sup>[12]</sup>。这个反应是类似于碱金属原子和卤素之间的“Harpoon”反应, 而卤素与碱金属的反应是相当迅速的。

下面三个过程是上能级粒子主要的弛豫过程



其中主要损耗过程是电子-离子解离复合过程(4), 速率常数估计为  $1 \times 10^{-8} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$ <sup>[13]</sup>。在当前条件下, 过程(5)影响较小, 其速率常数为  $2 \times 10^{-9} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$ <sup>[13]</sup>。

假设抽运功率密度为  $1 \text{ MW/cm}^2$ , 缓冲气体 He 压力为 3 atm, Kr 气压为 30 kPa, Li 蒸气压为 0.8 kPa, 这样由一个简化的含时速率方程计算<sup>[14]</sup>, 可以得到一个最大值上能级粒子数密度为  $4 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ 。如果在 149 nm 处 Li 蒸气的光吸收截面取  $10^{-19} \text{ cm}^2$ <sup>[12]</sup>, 对于  $(\text{KrLi})^+$  离子准分子 149 nm 发射峰, 其增益系数估计可为  $3\% \text{ cm}^{-1}$ 。这个数值可以进一步通过增加电子束的抽运能量而增加。由此可见, 此类离子准分子介质非常有希望通过高能电子束抽运来实现激光振荡。

## 4 结 论

由电子束抽运观察到了稀有气体-碱金属离子准分子  $(\text{KrLi})^+$  的真空紫外发射。结合 *ab initio* 计算结果, 其 147.5 nm 和 149.5 nm 的扩散发射带被分别标识为  $(\text{KrLi})^+$  离子准分子的  $2^1\Sigma^+ \rightarrow 1^1\Sigma^+$  和  $1^1\Pi \rightarrow 1^1\Sigma^+$  的准连续跃迁。对于  $(\text{KrLi})^+$  离子准分子 149.5 nm 发射峰, 增益系数估计可达到  $3\% \text{ cm}^{-1}$ 。这个数值可以进一步通过增加电子束的抽运能量和缓冲气体压力而增加。

## 参 考 文 献

- 1 P. Millar, T. Petersen, G. Warwar *et al.*. Neutral and ionic excimer molecules produced by reactive kinetics in a laser-produced plasma. *Opt. Lett.*, 1989, **14**(3): 171~ 173
- 2 J. Fiedler, L. Frey, F. Steigerwald *et al.*. VUV-transitions in ionic rare-gas alkali molecules. *Z. Phys. D*, 1989, **11**(1): 141~ 145
- 3 D. Xing, K. Ueda, H. Takuma. Ionic excimers and alkali dimer triplet-state excimer lasers. *Laser*

- Particle Beams*, 1993, **11**(1): 3~ 13
- 4 F. Steigerwald, H. Langhoff, W. Hammer. Observation of ionic excimer states in the alkali halides. *J. Chem. Phys.*, 1988, **88**(12): 7376~ 7379
  - 5 D. Xing, K. Ueda, H. Takuma. Vacuum ultraviolet transitions from rare-gas alkali ionic excimers  $(\text{XeRb})^+$  and  $(\text{KrRb})^+$  by electron beam excitation. *Appl. Phys. Lett.*, 1991, **59**(9): 1028~ 1030
  - 6 D. Xing. Electron beam excitation of cesium fluoride ionic excimer. *Chinese J. Lasers* (中国激光), 1996, **A23**(11): 1016~ 1020 (in Chinese)
  - 7 D. Xing, Q. Wang, S. C. Tan *et al.*. Bound-free vacuum uv emissions of  $(\text{XeCs})^+$  and  $(\text{KrCs})^+$  ionic excimers by relativistic electron beam excitation. *Appl. Phys. Lett.*, 1997, **71**(18): 2584~ 2586
  - 8 A. N. Nesmeyanov. Vapour Pressure of the Elements. New York: Academic, 1963. 457~ 468
  - 9 D. Xing, K. Ueda, H. Takuma. A study on the vacuum and extreme ultraviolet emissions from ionic rare-gas-lithium and -sodium molecules by *Ab initio* calculation. *Jpn. J. Appl. Phys.*, 1991, **30**(12A): 3533~ 3539
  - 10 S. Iwata, S. Nanbu, H. Kitajima. Theoretical studies of vacuum ultraviolet emission spectra of  $\text{NeLi}^+$  and  $\text{ArLi}^+$ . *J. Chem. Phys.*, 1991, **94**(5): 3707~ 3714
  - 11 M. Mantel, M. Schumann, A. Giez *et al.*. Investigations on the production kinetics of ionic alkali-rare gas excimers. *J. Chem. Phys.*, 1992, **97**(5): 3325~ 3332
  - 12 N. G. Basov, M. G. Voitik, V. S. Zuev *et al.*. efficiency of rare-gas-alkali ionic molecules in stimulated emission of ultraviolet and far ultraviolet radiation. *Sov. J. Quantum Electron.*, 1987, **17**(1): 106~ 107
  - 13 I. V. Kochetov, A. P. Napartovich, Dennis Lo. Gain dynamics of ionic excimer  $(\text{XeCs})^+$  emission at 160 nm in Ar/Xe/Cs mixtures. *Appl. Phys. Lett.*, 1994, **65**(15): 1888~ 1890
  - 14 D. Xing, K. Ueda, H. Takuma. Vacuum ultraviolet emissions from alkali-halide ionic excimer  $(\text{CsF})^+$  by electron beam excitation. *Jpn. J. Appl. Phys.*, 1992, **31**(8): 2440~ 2445

## Vacuum-ultraviolet Emission of Ionic Excimer $\text{Kr}^+\text{Li}$ and Excitation Dynamics by Relativistic $e$ -beam Pumping

Xing Da Tan Shici

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

K. Ueda

(*Institute for Laser Science, University of Electro-Communications, Japan Tokyo 182*)

**Abstract** A gas mixture of krypton with a hot vapor of lithium was excited to obtain two diffuse vacuum-ultraviolet emission bands centered at 147 and 149 nm. The observed emission bands are assigned to the  $2^1\Sigma^+ \rightarrow 1^1\Sigma^+$  and  $1^1\Pi \rightarrow 1^1\Sigma^+$  transitions of  $(\text{KrLi})^+$  ionic excimer. A similar band with two peaks at 186 and 189 nm from electron-beam-pumped Xe/Li mixtures was believed to be the same transitions of  $(\text{XeLi})^+$  excimer.

**Key words**  $\text{Kr}^+\text{Li}$  ionic excimer, vacuum-ultraviolet emissions,  $e$ -beam excitation