

Ar 的第三谱带 260 nm 中心谱区光学腔效应的实验观察*

高劭宏 赵永蓬 刘金成 王 骥

(哈尔滨工业大学可调谐激光技术国家级重点实验室 哈尔滨 150001)

提要 采用强流相对论电子束横向抽运纯氩,在属于 Ar 的第三谱带范围内的 260 nm 的中心谱区观察到了光学腔效应,并指出同时具有陡前沿和强流相对论特点的电子束抽运是实现这一中心谱区光学腔效应的重要条件。

关键词 离子准分子,稀有气体第三谱带,光学腔效应,强流相对论电子束,陡前沿

1 引 言

在物理和化学方面的许多应用都非常需要工作在 UV-VUV 范围内的短波长的相干光源。尽管人们作了很大的努力,到目前为止,在 UV-VUV 谱区,只存在为数不多的且波段范围有限的激光器。因此,短波长相干辐射的获得是量子电子学领域最富有挑战性的课题之一。1988 年, H. Langhoff^[1]将稀有气体第三谱带的来源解释为同核稀有气体离子准分子跃迁的结果,并提出其实现可调谐激光振荡的可能性。这使人们对稀有气体第三谱带的研究又发生极大的兴趣。到目前为止,已经发现了所有稀有气体的第三谱带。它们的波长范围几乎覆盖了整个 UV-XUV 波段(400~ 70 nm),并且有很宽的带宽,从数十纳米到 100 nm 不等。在这一谱带,有两个或更多谱带中心,谱带中心的位置随着抽运方式和压强的改变而改变。其中, Ar 的第三谱带的范围是 150~ 300 nm,辐射寿命约为 5ns。迄今为止,除了在 Ar 的 200 nm 附近有激光振荡的报道外^[2],在其他稀有气体和其他波长附近还没有这方面的报道。

2 实验装置

本实验采用强流相对论电子束横向抽运纯氩。与其他抽运方式相比,强流相对论电子束能有效地激发或电离几个到几百个大气压的气体介质。电子束装置如图 1 所示。为了保证实验结果的准确性和可靠性,分别对电流波形、电压波形、腔中注入电子的均匀性和荧光谱的稳定性进行了测量。实验证明,电子束具有良好的稳定性和重复性^[3]。图 2(a),(b)分别为 5 次测量电子束二极管电压和电流所得到的波形叠加图。其中,二极管电压测试采用多级分压法,分压比为 1·321640。束流的测量采用测量回流电阻上的电压的方法,二极管阻抗为 24.67 Ω 。采

* 国家高技术 863 激光技术领域和国家自然科学基金(69488001)资助项目。

收稿日期: 1998-12-07; 收到修改稿日期: 1999-03-11

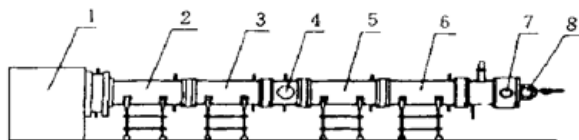


图 1 强流相对论电子束装置

- 1: Marx 发生器; 2, 3: 脉冲形成线; 4: 主开关;
- 5, 6: 脉冲传输线; 7: 二极管; 8: 气体腔

Fig. 1 High current relativistic electron beam device

- 1: Marx generator; 2, 3: PFL; 4: main switch;
- 5, 6: PTL; 7: diode; 8: gas cell

用 TDS684A 数字存储示波器记录波形。电子束的主要工作参数为: 二极管两端峰值电压为 560 kV, 峰值束流为 23.1 kA, 电压波形上升前沿为 7.6 ns, FWHM 为 36.7 ns。既具有强流相对论特性又具有陡前沿特性。二极管产生的电子束穿过钛膜进入谐振腔内。腔中充满纯度为 99.995% 的氩气。采用摄谱法记录光谱。用美国 Acton 公司生产的 VM-502 型真空紫外单色仪改造的谱仪记录来自 Ar 发出的 UV-VUV 光谱。实验装置如图 3 所示。为了获得乳剂特性曲线, 对上海 5FW 软 X 胶片进

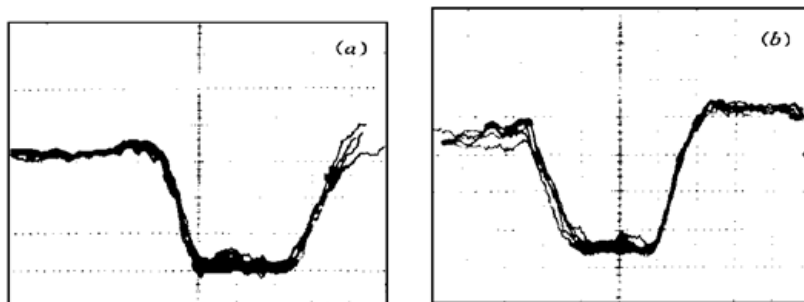


图 2 5 次电压波形 (a) 及 5 次电流波形 (b) 的叠加
横坐标代表时间(10 ns/div), 纵坐标代表电压(500 mV/div)

Fig. 2 Superimposition of five voltage waveforms (a) and five current waveforms (b)

The horizontal ordinate stands for time (10 ns/div), and the vertical ordinate stands for voltage (500 mV/div)

行了严格的相对标定^[4]。谐振腔腔长约为 30 cm, 腔的直径为 10 cm。谐振腔片放在固定在腔内的调整架上。用 He-Ne 激光器进行准直, 用内调焦望远镜监测前后腔片的平行度。腔片的直径为 35 mm, 腔片的中心连线与钛膜的距离为 53 mm。选用 JGS-1 玻片作为隔离窗片。

3 实验结果

首先, 在腔中不加腔片, 只充 3×10^5 Pa 的 Ar 气, 观察其荧光谱。图 4 为打 10 炮时所得到的荧光谱。从图中可以看到, 在 240 nm 附近有一个峰值。由于选用 JGS-1 玻片作为隔离窗片, 它的透过范围在 185~ 2500 nm, 因此排除了所观察到的荧光谱是中心波长分别位于 110 nm 和 126 nm 的第一和第二谱带的反射光栅次级谱的可能性。在其他的报道中也有与此相似的结果^[5]。同时看到, 虽然在 260 nm 附近无明显的峰值, 但其强度不为零。在打 20 炮的条

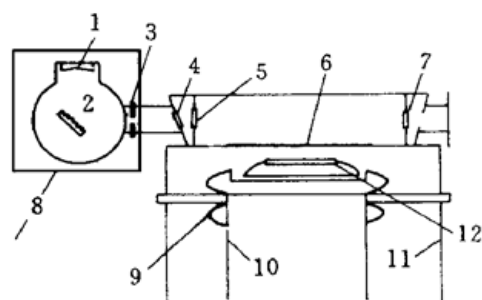


图 3 谐振腔及探测系统

- 1: 胶片; 2: 光栅; 3: 狭缝; 4: 透射窗; 5: 输出镜; 6: 阳极膜; 7: 后反镜; 8: 真空紫外单色仪; 9: 屏蔽罩; 10: 内筒; 11: 外筒; 12: 阴极

Fig. 3 Resonance cavity and detecting system

- 1: film; 2: grating; 3: slit; 4: transmission window; 5: output mirror; 6: anode film; 7: rear mirror; 8: VUV monochrometer; 9: shielding cover; 10: inner pipe; 11: outer pipe; 12: cathode

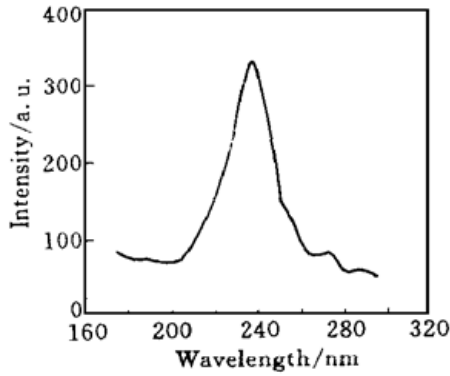


图 4 未加腔片时所观察到的荧光谱(10 炮)

Fig. 4 Fluorescence observed when any resonator mirror is not placed in the resonance cavity (10 shots)

件下,比较在只加镀有铝膜的后反镜与不加此镜两种情况下所观察到的光谱,如图 5 所示。可以看到,在 240 nm 附近和 260 nm 附近,加后反镜时的光强 I_2 比不加后反镜时的光强 I_1 都有增加。在 240 nm, $I_2/I_1 \approx 2$ 。在 260 nm, $I_2/I_1 = 2.69$ 。根据文献[6]所建立的测量小信号增益系数的数学模型计算,在 260 nm, $g_0 = 0.47 \text{ cm}^{-1}$, $g_0 l = 1.4$ 。用镀了介质膜的石英腔片作为前镜,它的透过率曲线如图 6 所示。在 260 nm 处,透过率约为 49%。在只加此介质片、并打 40 炮的情况下所得到的光谱如图 7 (a) 所示。可以看到,在 260 nm 处有一个明显的峰值,说明荧光谱受到了调制。当再加上铝反镜作为后腔镜时,得到的光谱如图 7 (b) 线所示。我们看到,加光学谐振腔与不加腔所得到的光强比为 15.8,远远超过非相

干时 2 倍的光强比。这说明在辐射 260 nm 的介质中存在着粒子数反转及放大的受激辐射,具有明显的光学腔效应。我们还发现,当单色仪的狭缝宽度从 1 mm 变化到 2 mm 时,在 260 nm 处的峰值并不随缝宽按比例地增加,而是非线性地增加。在荧光谱的实验中并没有这种现象。这说明,加谐振腔后,光强的空间分布是不均匀的。由于实验条件的限制,束散角还不能确定。

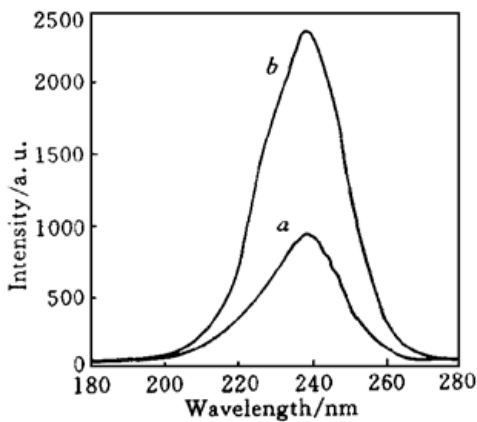


图 5 (a) 不加输出镜和后反镜时所观察到的光谱(20 炮); (b) 只加后反镜时所观察到的光谱(20 炮)

Fig. 5 (a) Spectra observed when both output mirror and rear mirror are not placed in the resonance cavity (20 shots); (b) Spectra observed when only a rear mirror is placed in the resonance cavity (20 shots)

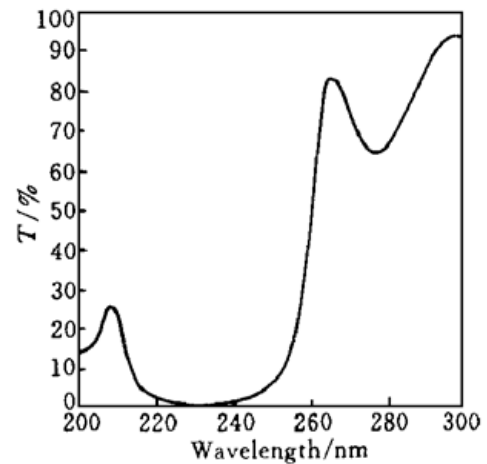


图 6 输出镜的透过率曲线

Fig. 6 Transmission curve of the output mirror

4 讨 论

对第三谱带来源的解释至今仍然存在着争论。1980 年, G. Klein 等^[5]提出第三谱带来源于 $\text{Ar}_2^+ (^2\Sigma_u^+)$ 的假说, 根据这一假说, $\text{Ar}_2^+ (^2\Sigma_u^+)$ 向两个低能态的辐射过程分别产生 183 nm 和 240 nm 中心谱区。1988 年, H. Langhoff^[11]根据 W. R. Wadt 的 *ab initio* 计算否定了 G.

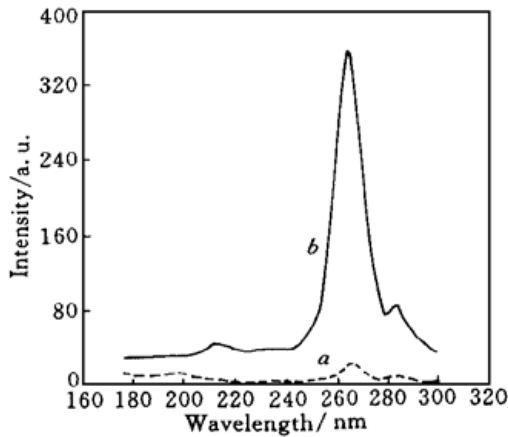


图 7 (a) 只加输出镜时所得到的光谱(40 炮);
(b) 同时加输出镜和后反镜时所得到的光谱(40 炮)
Fig. 7 (a) The spectra observed when only an output mirror is placed in the resonance cavity (40 shots);
(b) The spectra observed when both output mirror and rear mirror are placed in the resonance cavity (40 shots)

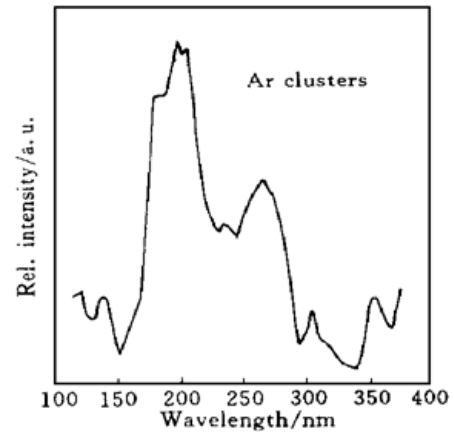


图 8 Ar(2p) 激发的 Ar 原子团的荧光谱^[11]
Fig. 8 Fluorescence of Ar(2p)-excited argon clusters^[11]

Klein 的假说,提出了第三谱带来源于 Ar_2^{2+} 的假说。认为第三谱带是 $\text{Ar}^{2+} \text{Ar} \rightarrow \text{Ar}^+ \text{Ar}^+ + h\nu$ 辐射跃迁的结果。但是 C. Cachoncinille^[7,8] 等的 *ab initio* 计算表明, Ar_2^+ 和 Ar_2^{2+} 都参与了第三谱带的辐射过程。还有人提出了 Ar_3^+ 参与第三谱带辐射的可能性^[9]。1994 年, E. Robert 等^[10] 提出了第三谱带可能来源于多种跃迁过程参与辐射的假说,但他对具体哪些跃迁过程参与了辐射并未作深入研究,只是肯定了是离子准分子参与第三谱带的辐射过程。从所搜集到的文献看,几乎所有的讨论都集中到 185 nm 和 240 nm 中心谱区,很少提到 260 nm 中心谱区。但是, E. Rühl 等^[11] 在 Ar(2p) 激发的 Ar 原子团的荧光谱中,观察到了包含 260 nm 中心谱区的 Ar 的第三谱带,如图 8 所示。说明 260 nm 中心谱区是一个独立的谱区。虽然在本实验未加任何腔片的荧光谱中,在 260 nm 附近并未看到明显的峰值,但所观察到的荧光谱中实际上包含着 260 nm 的成分。只不过是在电子束抽运的条件下,260 nm 附近的光强比 240 nm 附近的光强弱得多。加上铝后反镜,240 nm 与 260 nm 处的光强都增加,并无明显的谱位移,说明 260 nm 谱区可能是独立的谱。加上在 260 nm 附近透过、而在 240 nm 附近高反的前镜,形成谐振腔后,可以将 260 nm 中心谱区分离出来。由于谐振腔的选择性振荡的光腔效应,使得在 240 nm 处的输出受到抑制,而在 260 nm 处的光强增长得到加强。E. Rühl 等从实验的角度将这一谱区解释为 Ar_2^{2+} 跃迁的结果。对于 260 nm 中心谱区的来源,要得出确切的结论,还需要理论上和实验上的进一步研究。

在电子束抽运下, Ar_2^{2+} 主要通过前级粒子 Ar^{2+} 与中性粒子 Ar 的三体碰撞而形成



其速率常数为 $1.5 \times 10^{-30} \text{ cm}^6/\text{s}$ ^[12]。但另一方面,等离子体中的电子对 Ar_2^{2+} 及其前级粒子的淬灭过程也是非常迅速的。其中, Ar_2^{2+} 与电子的离解复合是重要的淬灭过程



其速率常数为 $2.6 \times 10^{-7} \text{ cm}^3/\text{s}$ ($T_e = 1.5 \text{ eV}$)^[12]。因此,为了提高 Ar_2^{2+} 的粒子数密度,首先要有足够快的激励速率,同时又要保证有足够大的激励强度。而通常用来激励准分子的电子束装

置可以做到较高的激励强度(约 MA 量级),但上升前沿不够快,不利于作为离子准分子的激励手段。使用经过改造的电子束装置,除了具有强流相对论特点之外,又具有陡前沿特点,再加上横向抽运,这样可以实现快速、高强度、大体积和均匀抽运。这是实现 260 nm 中心谱区光学腔效应的重要条件。

光强比的进一步提高有待于选择具有最佳透过率的前镜以及选择最佳激活区,以达到激光振荡的最佳耦合输出。

参 考 文 献

- 1 H. Langhoff. The origin of the third continua emitted by excited rare gases. *Opt. Commun.*, 1988, **68** (1): 31~ 34
- 2 Wang Qi, Liu Xuelong, Men Zhuowu *et al.*. Observation of laser oscillation in ionic excimer (Ar^{2+} Ar)²⁺ pumped by relativistic electron beam (RBE). Conference Edition (Cat. No. 94CH3463-7), CLEO'94. Smmaries of Papers Presented at the Conference on Laser and Electro-Optics. Vol. 8. 1994. Technical Digest Series, Washington, DC, USA: *Opt. Soc. America*, 1994. 346
- 3 Gao Shaohong, Zhao Yongpeng, Wang Zhenxu *et al.*. The measurement about stability of electron beam device. *High Power and Particle Beams* (强激光与粒子束), 1997, **9**(4): 596~ 598 (in Chinese)
- 4 Zhao Yongpeng, Wang Zhenxu, Gao Shaohong *et al.*. The relative calibration for Shanghai 5FW film. *High Power and Particle Beams* (强激光与粒子束), 1997, **9**(4): 627~ 630 (in Chinese)
- 5 G. Klein, M. J. Carvalho. Argon luminescence bands between 160 and 290 nm. *J. Phys. B: At. Mol. Phys.*, 1981, **14**: 1283~ 1290
- 6 Zhao Yongpeng, Wang Qi, Gao Shaohong *et al.*. The measurement and calculation about the small signal gain coefficients of the third continuum of argon. *SPIE*, 1998, **3549**: 221~ 224
- 7 C. Cachoncinlle, J. M. Pouvesle, G. Durand *et al.*. Theoretical study of the Rydberg excited electronic states of Ar_2^+ . *J. Chem. Phys.*, 1992, **96**(8): 6093~ 6103
- 8 C. Cachoncinlle, J. M. Pouvesle, G. Durand *et al.*. Theoretical study of the electronic structure of Ar_2^{2+} . *J. Chem. Phys.*, 1992, **96**(8): 6085~ 6092
- 9 D. L. Turner, D. C. Conway. Study of the $2\text{Ar} + \text{Ar}_2^+ = \text{Ar} + \text{Ar}_3^+$ reaction. *J. Chem. Phys.*, 1979, **71** (4): 1899~ 1901
- 10 E. Robert, A. Khacef, C. Cachoncinlle *et al.*. Time-resolved spectroscopy of high pressure rare gases excited by an energetic flash X-ray source. *Opt. Commun.*, 1995, **117**(1, 2): 179~ 188
- 11 E. Rühl, C. Heinzl, H. W. Jochims. Fluorescence of $\text{Ar}(2p)$ -excited argon clusters. *Chem. Phys. Lett.*, 1993, **211**(4, 5): 403~ 409
- 12 M. Schumann, H. Langhoff. Kinetic studies of ionic excimers. *J. Chem. Phys.*, 1994, **101**(6): 4769~ 4777

Experimental Observation of the Optical Resonator Effect around 260 nm Central Spectral Region in the Third Continuum of Argon

Gao Shaohong Zhao Yongpeng Liu Jincheng Wang Qi

(National Key Laboratory of Tunable Laser Technology, Harbin Institute of Technology, Harbin 150001)

Abstract Optical resonator effect is observed around 260 nm central spectral region using high current relativistic electron beam to pump pure argon transversely, and it is indicated that electron beam pumping with both steep rise time and high current relativistic electron beam is an important condition for realization of optical resonator effect around this central spectral region.

Key words ionic excimer, the third continua in rare gases, optical resonator effect, high current relativistic electron beam, steep rise time