

文章编号: 0258-7025(2003)05-0391-04

# 电子束抽运 $\text{Ar}_2^+$ 离子准分子的动力学过程

赵永蓬, 王 骥, 刘金成

(哈尔滨工业大学可调谐激光技术国家重点实验室, 黑龙江 哈尔滨 150001)

**摘要** 建立了电子束抽运下,  $\text{Ar}_2^+$  离子准分子的反应动力学模型。给出了与电子束能量沉积和  $\text{Ar}_2^+$  离子准分子形成有关的反应过程。建立了反应速率方程组, 并对该方程组进行了数值求解, 得到了  $\text{Ar}_2^+$  离子准分子的粒子数密度随时间的演变情况。根据粒子数密度的计算结果, 求解了小信号增益系数, 并将该理论计算结果与实验结果进行了比较。理论和实验结果的吻合, 表明氩第三谱带中中心位于 240 nm 的谱区可能来源于  $\text{Ar}_2^+$  离子准分子的跃迁。

**关键词** 激光技术; 动力学; 电子束; 离子准分子; 小信号增益

**中图分类号** TN 241 **文献标识码** A

## Kinetics on $\text{Ar}_2^+$ Ionic Excimer Pumped by Electron Beam

ZHAO Yong-peng, WANG Qi, LIU Jin-cheng

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

**Abstract** The kinetics model of  $\text{Ar}_2^+$  ionic excimer pumped by electron beam is built. The reactions on energy deposition of electron beam and formation of  $\text{Ar}_2^+$  ionic excimer are found. The reaction rate equations are given. The equations are calculated numerically and the relation between number density of  $\text{Ar}_2^+$  ionic excimer and time is obtained. With the calculation results of number density, the small signal gain is calculated. Experimental results are compared with the theoretical results. And it is proved that the 240 nm spectrum in the third continuum originates from the transition of  $\text{Ar}_2^+$  ionic excimer.

**Key words** laser technique; kinetics; electron beam; ionic excimer; the small signal gain

## 1 引言

1985年 R. Sauerbrey 根据等电子序原理构造了离子准分子产生激光的方案<sup>[1]</sup>。从理论上讲, 离子准分子与相应等电子序的中性准分子具有基本相同的电子结构, 因而同中性准分子一样, 可实现高功率、高效率激光输出。但离子准分子比其他等电子序的中性准分子输出的波长更短, 是实现低激发阈短波长激光的主要方案之一。氩的第三谱带正是由氩的离子准分子跃迁产生的。其中中心位于 185 nm 的光谱来源于  $\text{Ar}_2^{2+}$  离子准分子的跃迁。而中心位于 240 nm 的光谱是来源于一价还是二价离子准分子还存在争论<sup>[2~5]</sup>。1992年, C. Cachoncinlle

等认为  $\text{Ar}_2^{2+}$  离子准分子的跃迁只能产生中心位于 185 nm 附近的光谱, 中心位于 200~300 nm 之间的光谱很可能来源于  $\text{Ar}_2^+$  离子准分子的跃迁<sup>[4,5]</sup>。1994年 M. Schumann 等对电子束抽运下, 利用  $\text{Ar}_2^+$  离子准分子辐射衰变产生激光振荡的可能性进行了动力学分析<sup>[6]</sup>。指出由于等离子体中电子和中性粒子对  $\text{Ar}_2^{2+}$  的快速猝灭, 似乎增加  $\text{Ar}_2^{2+}$  离子准分子的密度, 以实现电子束抽运下的光学增益是不可能的。而对电子束抽运下  $\text{Ar}_2^+$  离子准分子的动力学过程, 没有给出计算和讨论。之所以不能确定氩第三谱带是来源于一价还是二价离子准分子, 一个很重要的原因是对氩离子准分子的动力学过程

收稿日期: 2002-02-05; 收到修改稿日期: 2002-04-08

基金项目: 国家自然科学基金(60178005)资助项目。

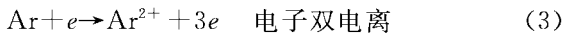
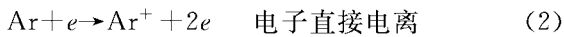
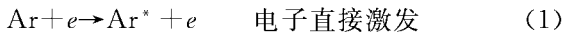
作者简介: 赵永蓬(1973—), 男, 哈尔滨工业大学光电子技术研究所讲师, 博士, 主要从事紫外和软 X 光激光研究。E-mail: zhaoy3@yahoo.com.cn

分析得不够深入。因此本文对电子束抽运  $\text{Ar}_2^+$  离子准分子的动力学过程进行了深入的研究,全面地考虑了可能涉及的反应,建立了完善的化学动力学模型。根据理论和实验结果比较认为中心位于 240 nm 的光谱来源于  $\text{Ar}_2^+$  离子准分子的跃迁。

## 2 $\text{Ar}_2^+$ 离子准分子的动力学模型

在所考虑的反应过程中,把高能电子对基态氩的电离和激发过程归于电子束能量在气体中的沉积,也就是说这些只与高能电子有关的电子碰撞反应,是电子束能量沉积反应。而另外与电子相关的反应,高能和低能电子对它们都有贡献,称之为反应动力学过程。与电子碰撞无关的反应显然与电子束的能量沉积无关,只是沉积能量在不同物质间的传递。

首先来讨论电子束能量沉积反应。这里电子束能量沉积的反应包括以下三个反应:



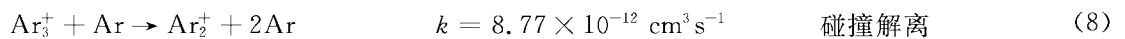
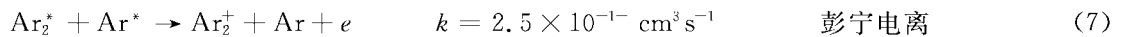
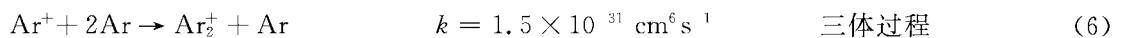
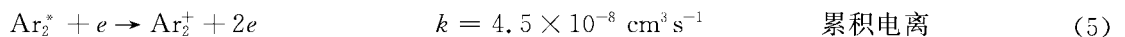
要想了解各反应进行的快慢,建立反应速率方程组,首先要对以上反应的速率常数进行求解。速率常数的计算与参与这些反应的高能电子分布函数和各反应截面有关

$$k = \int_0^{E_p} v \sigma(u) \frac{f(u,t)}{n_e} du \quad (4)$$

其中  $k$  为反应速率常数,  $E_p$  为电子束的电子所具有的能量,  $v$  是能量为  $u$  的电子的速度,  $\sigma(u)$  为反应截

面,  $n_e$  为参与反应的高能电子的电子数密度,  $f(u,t)$  为高能电子分布函数。电离反应截面的选取参考文献[7],考虑了内壳层电子的电离过程;激发反应截面的选取考虑了 21 个向基态的允许跃迁能级和 19 个禁戒跃迁能级。高能电子分布函数  $f(u,t)$  的求解,参考文献[8]采用了玻耳兹曼方程法。高能电子的密度根据分布函数对能量的积分结果确定。由于三个反应对参与电子的能量要求不同,这使得参与反应电子的密度也不同,并且在建立速率方程组时各生成项和猝灭项都要乘以电子密度。所以为了计算的方便,这里给出的反应速率常数已经乘以了电子数密度,因而其单位是  $\text{s}^{-1}$ 。另外根据高能电子分布函数的计算结果,电子分布函数在电子束工作开始的 1 ns 时间内达到稳态分布;在电子束停止工作的 1 ns 时间内,几乎所有的高能电子都被猝灭掉。由于电子束的脉冲宽度为 36 ns,所以在计算中假设电子束工作期间上述反应的速率常数为一定值,随着电子束脉冲的结束而反应结束。取一组实验参数:  $E_p$  为 466 keV,电子束电流密度为  $178 \text{ A} \cdot \text{cm}^{-2}$ ,气压为 0.3 MPa 时,计算得到反应(1),(2)和(3)的速率常数分别为  $2.2 \times 10^4 \text{ s}^{-1}$ ,  $5.5 \times 10^3 \text{ s}^{-1}$  和  $2.4 \times 10^2 \text{ s}^{-1}$ 。

当相对论电子束注入腔中后,腔中的各种反应过程就开始了,这其中包括电子束能量沉积的反应和其他反应动力学过程。整个腔中的反应过程是非常复杂的,其中与  $\text{Ar}_2^+$  离子准分子形成有关的反应主要有四个<sup>[9,10]</sup>



反应过程(5)是电子对激发态物质的电离过程。由于物质已经处于激发态,所以这些反应对电子的能量要求并不高,也就是说低能的电子参与了这些反应。反应过程(6)是三体反应过程。该反应过程是  $\text{Ar}_2^+$  离子准分子的主要形成机制。在发生碰撞的三体中,其中有两体为氩原子,一个氩原子与  $\text{Ar}^+$  结合形成离子准分子,而另一个氩原子带走反应中的多余能量。在高气压的气体中,由于氩原子的密度很大,所以该反应很容易发生。在实验中气压一般选择在 0.3 MPa 附近,所以该三体过程在整

个动力学过程中显得尤为重要。在后两个反应中,由于参加反应的  $\text{Ar}_2^*$  和  $\text{Ar}_3^+$  的粒子数密度比  $\text{Ar}^+$  和  $\text{Ar}$  要小几个量级,所以它们不是  $\text{Ar}_2^+$  离子准分子的主要形成过程。

在各反应的共同作用下,腔中各物质的粒子数密度随时间的演变过程,需要通过对反应速率方程组的求解中得出。这些方程在描述各物质粒子数密度变化速率时,用所有形成项的和减去所有倒空项的和,可写成如下表达式

$$\sum_i \frac{dn_i}{dt} = \sum_j F_{ji} - \sum_k D_{ik} \quad (9)$$

式中  $n_i$  代表某一物质的粒子数密度;  $F$  代表形成项;  $D$  代表猝灭项。在我们找到的腔中可能发生的 39 个反应过程中涉及 11 种物质, 因而速率方程组中包括 11 个一阶常微分方程。对速率方程组的求解采用四阶龙格-库塔数值算法。经计算可以得到各物质的粒子数密度随时间的变化情况。求解中各参数的选取根据具体的实验条件来确定。图 1 给出了 Ar<sub>2</sub><sup>+</sup> 离子准分子粒子数密度随时间的变化情况。在求解中其参数的选取, 与前面(1)~(3)式的反应速率常数时的条件相同。从图中可以看出, Ar<sub>2</sub><sup>+</sup> 离子准分子粒子数密度的最大值为  $1.142 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ 。与 Ar<sub>2</sub><sup>+</sup> 离子准分子相比, Ar<sub>2</sub><sup>2+</sup> 离子准分子粒子数密度要小近两个数量级, 仅为  $2.138 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ 。在电子束工作期间, 随着时间的增加 Ar<sub>2</sub><sup>+</sup> 离子准分子粒子数密度逐渐增加, 当电子束停止工作时, Ar<sub>2</sub><sup>+</sup> 离子准分子粒子数密度逐渐减小。为了验证计算结果的正确性, 将计算结果与文献[6]的计算结果进行了比较。文献中报道在氩粒子数密度为  $8 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$  时, Ar<sub>2</sub><sup>2+</sup> 离子准分子粒子数密度为  $1 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ 。这一结果与我们的计算结果相符, 从而证明了计算结果的正确性。另外, 计算结果与实验结果相吻合, 这更进一步证明了计算结果的正确性。

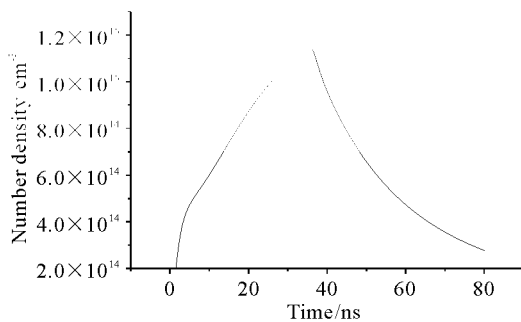


图 1 Ar<sub>2</sub><sup>+</sup> 粒子数密度随时间的变化

Fig. 1 Ar<sub>2</sub><sup>+</sup> number density versus time

### 3 小信号增益的理论和实验结果

根据前面的粒子数密度的计算结果, 将其乘以各离子准分子的受激发射截面就可以得出增益的结果。受激发射截面可以表示为

$$\sigma_{se} = \frac{\lambda^2}{8\pi\tau_s\Delta\nu} \quad (10)$$

其中  $\lambda, \nu$  为离子准分子跃迁产生谱带的中心波长和频率;  $\tau_s$  为激光上能级寿命;  $\Delta\nu$  为谱带半高宽。经

计算 Ar<sub>2</sub><sup>+</sup> 离子准分子的受激发射截面为  $2.186 \times 10^{-17} \text{ cm}^2$ 。根据该截面可以计算出 Ar<sub>2</sub><sup>+</sup> 离子准分子可能产生最大的小信号增益为  $0.025 \text{ cm}^{-1}$ 。

为了将理论计算结果与实验结果很好地比较, 根据具体的实验条件, 在理论上改变电子束的电子能量, 对 Ar<sub>2</sub><sup>+</sup> 离子准分子可能产生最大增益的变化情况进行了计算。同时实验上改变电子束的电压参数对氩第三谱带中中心位于 240 nm 谱区的小信号增益进行了测量。由于后反镜法测量小信号增益的实验装置和数学模型, 已经在文献[11]中给出了详细的报道, 所以这里不再讨论, 只给出具体的实验条件和测量所得的实验结果, 以便与理论计算结果相比较。电子束工作时电流波形的脉宽约 36 ns, 电流峰值为 19.6 kA, 电压峰值为 466, 394, 322 和 251 kV, 腔内气压为 0.3 MPa。这些实验条件与理论计算的条件保持一致。由于电子束工作时要使传输线与二极管的阻抗基本匹配, 以保证改变电压时波形基本不变。如果改变二极管阴阳极的距离, 必然要使二极管的阻抗发生变化, 影响波形的形状。同时 Marx 发生器充电电压的改变, 会使加在二极管两端的电压发生改变, 这也会使二极管的阻抗发生变化。所以为了保证波形的形状没有明显的变化, 二极管阴阳极距离和 Marx 发生器的充电电压都不能有过大的改变, 这使得实验中电压的改变范围受到限制。实验的测量结果与理论计算结果的比较如图 2 所示。从图中可以看出实验测量结果和理论计算结果具有相同的趋势和数量级, 所以理论和实验结果基本符合。实验上测得的小信号增益要比理论计算结果偏大, 这可能由于在电子分布函数计算中, 对电子束的能量沉积计算值偏低, 导致在电子束能量沉积反应速率常数计算中所得结果偏低, 从而使 Ar<sub>2</sub><sup>+</sup> 离子准分子的前驱粒子 Ar<sup>+</sup> 的粒子数密度计算结果偏低, 这对 Ar<sub>2</sub><sup>+</sup> 离子准分子的主要形成反应(6)

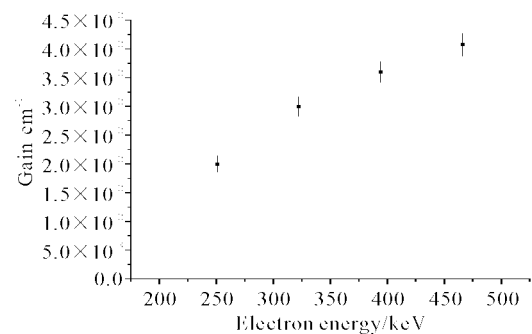


图 2 增益随电子束能量的变化

Fig. 2 Gain versus electron energy in electron beam

式不利。

## 4 结 论

由于根据理论计算,  $\text{Ar}_2^{2+}$  离子准分子上能级粒子数密度太小, 不可能产生增益, 所以中心位于 240 nm 谱区不可能来源于它的跃迁。而  $\text{Ar}_2^+$  离子准分子可能产生的最大增益与实验结果相符, 因此认为氩第三谱带中中心位于 240 nm 的该谱带可能来源于  $\text{Ar}_2^+$  离子准分子的跃迁。这一假设与 C. Cachoncinlle 等对该谱区的来源的解释一致。若要得到确切的结论, 还需对 240 nm 中心谱区的时间分辨谱进行测量, 并与理论计算结果相比较。另外, 由于实验上测到了小信号增益系数, 所以很可能利用  $\text{Ar}_2^+$  离子准分子机制观察到 240 nm 谱区的光腔效应, 甚至激光振荡输出。总之, 理论和实验研究不仅为探索第三谱带的来源提供了有用的数据和方法, 还为实现同核稀有气体离子准分子的激光振荡奠定了基础。

### 参 考 文 献

- 1 R. Sauerbrey, H. Langhoff. Excimer ions as possible candidates for VUV and XUV lasers [J]. *IEEE. J. Quantum Electron.*, 1985, **QE-21**(3):179~181
- 2 G. Klein, M. J. Carvalho. Argon luminescence bands between 1600 and 2900 Å [J]. *J. Phys. B: At Mol. Phys.*, 1981, **14**:1283~1290
- 3 H. Langhoff. The origin of the third continua emitted by excited rare gases [J]. *Opt. Comm.*, 1988, **68**(2):31~34
- 4 C. Cachoncinlle, J. M. Pouvesle, G. Durand *et al.*. Theoretical study of the electronic structure of  $\text{Ar}_2^+$  [J]. *J. Chem. Phys.*, 1992, **96**(8):6085~6092
- 5 C. Cachoncinlle, J. M. Pouvesle, G. Durand *et al.*. Theoretical study of the rydberg excited electronic state of  $\text{Ar}_2^+$  [J]. *J. Chem. Phys.*, 1992, **96**(8):6093~6103
- 6 M. Schumann, H. Langhoff. Kinetic studies of ionic excimers [J]. *J. Chem. Phys.*, 1994, **101**(6):4769~4777
- 7 J. Bretagne, G. Caliede, M. Legentil *et al.*. Relativistic electron-beam-produced plasma. I: Collision cross section and loss function in argon [J]. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, 1986, **19**:761~777
- 8 J. Bretagne, G. Delouya, J. Godart *et al.*. High-energy electron distribution in an electron-beam-generated argon plasma [J]. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, 1981, **14**:1225~1239
- 9 J. L. Lawless, D. Lo. Comprehensive kinetic model for electron-beam-excited  $\text{XeCs}^+$  ionic excimers [J]. *Appl. Phys. B*, 1995, **60**:391~403
- 10 N. G. Basov, V. A. Danilychev. Condensed- and compressed-gas lasers [J]. *Sov. Phys. Usp.*, 1986, **29**(1):31~56
- 11 Zhao Yongpeng, Wang Qi, Gao Shaohong *et al.*. Measurement of small signal gain of argon ionic excimer emission pumped by electron beam [J]. *Chinese J. Lasers* (中国激光), 2000, **A27**(2):123~126 (in Chinese)