

文章编号: 0258-7025(2006)Supplement-0229-03

氩第三谱带中 240 nm 时间谱测量及动力学分析

赵永蓬, 王 骥, 李 岩, 刘金成

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

摘要 利用强流相对论电子束装置, 观察到了中心位于 240 nm 的氩第三谱带, 并利用光电倍增管测量了 240 nm 的光强随时间的演变情况。实验结果表明 240 nm 时间谱的宽度大于电子束的电流脉冲宽度。建立了电子束抽运氩离子准分子的动力学模型, 并计算了氩离子准分子粒子数密度随时间的演变情况。讨论了腔中反应过程对离子准分子形成的影响。理论和实验结果比较表明, 240 nm 时间谱的测量结果与 Ar_2^+ 离子准分子粒子数密度随时间的演变情况相一致。因此 240 nm 的光谱应该来源于 Ar_2^+ 离子准分子的跃迁。

关键词 激光物理; 离子准分子; 电子束; 时间谱; 动力学

中图分类号 TN241 **文献标识码** A

Time-Resolved Spectra of 240 nm at Argon Third Continuum and Kinetics Analysis

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

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

Abstract With electron beam, the third continuum of argon, which centers at 240 nm, has been obtained. Then photomultiplier has been used to measure the temporal evolution of 240 nm. The results show that the width of the temporal evolution at 240 nm is larger than the width of the current waveform. In theory, the kinetics model of the argon ionic excimer pumped by electron beam is built. And the relation between density of argon ionic excimer and time is obtained. The effect of the reactions on production of ionic excimer is discussed. The results of theory and experiment show that the time behavior of 240 nm is same as the density of Ar_2^+ ionic excimer. Therefore, the spectrum around 240 nm should be emitted by Ar_2^+ ionic excimer.

Key words laser physics; ionic excimer; electron beam; time spectrum; kinetics

1 引 言

综合所有稀有气体的第三谱带, 其光谱范围几乎覆盖了整个真空紫外(VUV)和紫外(UV)波段, 其中氩的第三谱带研究最深入。目前氩第三谱带的来源研究还没有得到确切的结论, 研究表明该谱带可能来源于氩的一价或二价离子准分子的跃迁^[1,2]。对氩第三谱带的理论和实验研究工作, 主要围绕探索该谱带的来源进行, 但至今仍没有确切结论。其中不能判断谱带来源的主要原因是, 不同研究者得到的实验结果不一致。如第三谱带表现出的时间特性也非常复杂, 时间分辨谱测量中, 观察到了三种实验现象: 时间分辨谱的测量表现出两个时间成分, 第一个成分对应于激发脉冲, 另一个慢的时间成分, 远大于抽运脉冲^[3]; 时间分辨谱只存在一

个时间成分, 并与抽运脉冲保持一致^[4]; 时间分辨谱中只存在一个时间成分, 并远大于抽运脉冲^[5]。时间分辨谱的测量表明, 不同的实验条件下, 产生氩第三谱带的物质有不同的衰变时间。为了进一步研究第三谱带的时间特性, 采用强流相对论电子束抽运研究了氩第三谱带中 240 nm 的时间特性。分析离子准分子产生与猝灭的动力学过程, 根据理论和实验的结果确定了该谱带的可能来源。

2 240 nm 时间谱的测量

实验中所用的强流相对论电子束装置的结构和主要参量在文献[6]中已经给出了详细的介绍, 电子束的参量为: 二极管电压 500 kV, 电流 17.8 kA, 脉宽 36 ns。气体腔中充入氩气的纯度为 99.9995%, 气压

基金项目: 国家自然科学基金(60178005)资助课题。

作者简介: 赵永蓬(1973—), 男, 哈尔滨工业大学副教授, 博士, 主要从事紫外和软 X 光激光的研究。

E-mail: zhaoy3@yahoo.com.cn

为 0.3 MPa。对氩第三谱带的分光 and 光谱时间特性的测量分别采用美国 Acton 公司的真空紫外单色仪和快速响应的紫外光电倍增管,光电倍增管输出波形及电子束二极管的波形由美国 Tek 公司的型号为 3032B 的数字存储示波器记录。文献[6]中已经给出了我们测得的第三谱带形状,其中心位于 240 nm,因此测量 240 nm 光谱的时间特性对研究该谱带具有重要意义。典型的 240 nm 时间谱测量结果如图 1 所示。图中实线是电子束二极管处的电流波形,虚线为光电倍增管输出的波形。该实验结果表明 240 nm 谱线强度首先随电子束电流增加而增加。当电子束电流脉冲结束后,光强逐渐减弱。整个时间分辨谱的脉宽略大于电子束电流脉宽。根据 240 nm 谱带的时间特性,其来源应与 Ar 离子或高激发态原子有关,因为这些粒子的密度会随电子束电流减小而迅速减小,从而导致 240 nm 谱带辐射迅速结束。

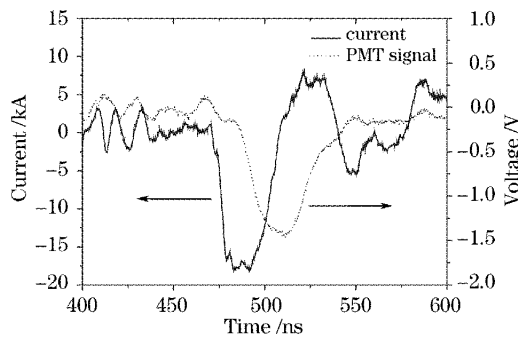


图 1 电流波形和光电倍增管波形

Fig. 1 Waveforms of current and photomultiplier

3 氩离子准分子动力学计算

1994 年 M. Schumann 和 H. Langhoff^[7] 对电子

束抽运下,利用 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。指出由于等离子体中电子和中性粒子对 Ar_2^+ 的快速猝灭,增加 Ar_2^+ 离子准分子的密度,以实现电子束抽运下的光学增益似乎是不可能的。此外 A. M. Boichenko 等^[8] 也对稀有气体离子准分子进行了动力学分析,认为第三谱带来源于一价离子准分子的跃迁。但以上的动力学分析没有定量讨论反应过程对氩离子准分子产生和猝灭的影响。我们利用找到的 43 个腔中可能进行的反应,以及各反应的反应速率常数,建立了反应速率方程组并进行了数值求解。与离子准分子的形成和猝灭有关的主要的反应过程如表 1 所示,其中反应 1~4 是与电子束能量沉积直接相关的反应,其反应速率的求解与腔中的电子能量分布以及各反应的截面有关,具体计算公式已经在文献[9]中给出了详细的介绍。根据实验条件,利用玻耳兹曼方程法可以计算出腔中的电子能量分布 $f(u)$,如图 2 所示,其中 u 代表电子能量。根据电子能量分布计算的各反应的反应速率常数已在表 1 中列出。

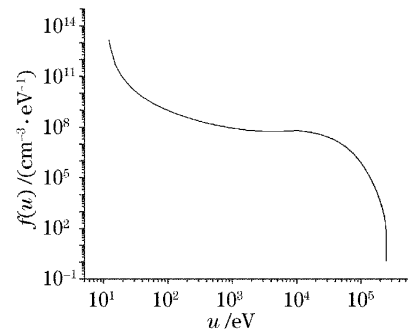


图 2 稳态电子分布

Fig. 2 Stationary electron distribution

表 1 电子束抽运氩中的主要反应过程

Table 1 Main reactions in argon pumped by electron beam

No.	Reactions	Rate constants	Type
1	$\text{Ar} + e \rightarrow \text{Ar}^+ + 2e$	$1.61 \times 10^4 \text{ s}^{-1}$	direct ionization of electron
2	$\text{Ar} + e \rightarrow \text{Ar}^* + e$	$8.17 \times 10^4 \text{ s}^{-1}$	direct excitation of electron
3	$\text{Ar} + e \rightarrow \text{Ar}^{2+} + 3e$	780.9 s^{-1}	double ionization
4	$\text{Ar}^+ + e \rightarrow \text{Ar}^{2+} + 2e$	$1 \times 10^7 \text{ s}^{-1}$	stepwise ionization
5	$\text{Ar}_2^*(1) + e \rightarrow \text{Ar}_2^+ + 2e$	$4.5 \times 10^{-8} \text{ cm}^3/\text{s}$	impact ionization
6	$\text{Ar}_2^+ + e \rightarrow \text{Ar}^* + \text{Ar}$	$5 \times 10^{-7} \text{ cm}^3/\text{s}$	dissociative recombination
7	$\text{Ar}_2^{2+} + e \rightarrow \text{Ar}^* + \text{Ar}^+$	$1.5 \times 10^{-7} \text{ cm}^3/\text{s}$	dissociative recombination
8	$\text{Ar}^+ + 2\text{Ar} \rightarrow \text{Ar}_2^+ + \text{Ar}$	$1.5 \times 10^{-31} \text{ cm}^6/\text{s}$	three-body process
9	$\text{Ar}^{2+} + 2\text{Ar} \rightarrow \text{Ar}_2^{2+} + \text{Ar}$	$1.46 \times 10^{-30} \text{ cm}^6/\text{s}$	three-body process
10	$\text{Ar}_2^{2+} + 2\text{Ar} \rightarrow \text{Ar}_3^{2+} + \text{Ar}$	$4.4 \times 10^{-32} \text{ cm}^6/\text{s}$	three-body process
11	$\text{Ar}_3^+ + \text{Ar} \rightarrow \text{Ar}_2^+ + 2\text{Ar}$	$8.77 \times 10^{-12} \text{ cm}^3/\text{s}$	impact dissociation
12	$\text{Ar}^+ + e + \text{Ar} \rightarrow \text{Ar}^*(4p) + \text{Ar}$	$1.5 \times 10^{-26} \text{ cm}^6/\text{s}$	three-body recombination
13	$\text{Ar}_2^+ + e + \text{Ar} \rightarrow \text{Ar}^*(4p) + 2\text{Ar}$	$1.5 \times 10^{-26} \text{ cm}^6/\text{s}$	three-body recombination
14	$\text{Ar}^* + \text{Ar}^* \rightarrow \text{Ar}_2^+ + e$	$6 \times 10^{-10} \text{ cm}^3/\text{s}$	pinning ionization

理论计算表明, Ar_2^+ 和 Ar_2^{2+} 离子准分子的主要形成过程是三体碰撞反应 8 和 9, 因此提高 Ar 的粒子数密度对这两个反应有利。 Ar_2^+ 离子准分子粒子数密度随时间演变的情况如图 3 所示, 图中实线代表考虑所有反应时的粒子数密度, 虚线代表不考虑相应反应时的粒子数密度变化情况。从图 3 可以看出, Ar_2^+ 离子准分子粒子数密度随电子束电流的增加而增加, 当电子束电流减小时, 粒子数密度逐渐减小。此外, 不考虑反应 6 和 13 时, 离子准分子的粒子数密度明显增加, 而且不考虑反应 13 时其增加幅值更明显。因此反应 6 和 13 是 Ar_2^+ 离子准分子的主要猝灭反应。

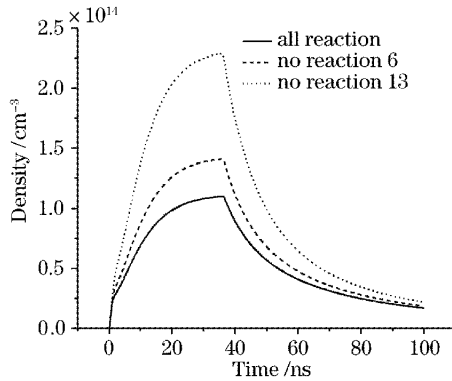


图 3 Ar_2^+ 粒子数密度随时间的变化

Fig. 3 Ar_2^+ number density versus time

同样的方法计算表明, 反应 12 也是主要猝灭反应, 而其他的猝灭反应的影响较小。 Ar_2^{2+} 离子准分子粒子数密度随时间演变的情况如图 4 所示, 图中实线代表考虑所有反应时的粒子数密度, 虚线代表不考虑相应反应时的粒子数密度变化情况。从图 4 可以看出, Ar_2^{2+} 离子准分子粒子数密度与电子束电流脉冲保持一致, 电子束电流结束以后, 粒子数密度迅速变成 0。不考虑反应 7 和 10 时, 离子准分子的粒子数密度明显增加, 而且二者的整体形状稍有差

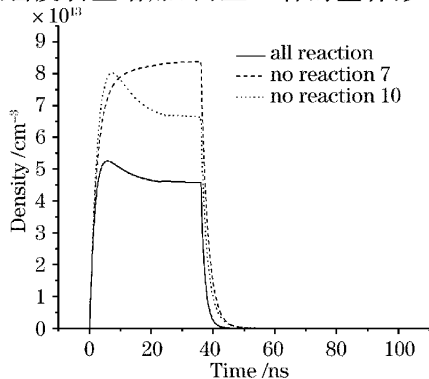


图 4 Ar_2^{2+} 粒子数密度随时间的变化

Fig. 4 Ar_2^{2+} number density versus time

别, 反应 7 是影响曲线平顶处时间特性的主要因素。计算表明, 反应 7 和 10 是主要猝灭反应, 而其他的猝灭反应的影响很小。

根据图 1 中 240 nm 时间特性的测量结果, 我们可以看出光强随时间的演变情况与 Ar_2^+ 离子准分子粒子数密度随时间的演变情况一致, 当电流脉冲结束后二者都是逐渐减小的。这与 Ar_2^{2+} 离子准分子粒子数密度随时间的演变情况明显不同。因此氩第三谱带中 240 nm 附近的光谱辐射很可能来源于 Ar_2^+ 离子准分子的跃迁。

4 结 论

利用强流相对论电子束装置抽运氩, 开展了氩第三谱带中 240 nm 光谱时间特性的测量工作。同时理论上建立了氩离子准分子形成与猝灭的动力学模型, 理论计算表明, Ar_2^+ 离子准分子粒子数密度随时间的演变情况与 240 nm 光强随时间的变化情况保持一致, 而与 Ar_2^{2+} 离子准分子粒子数密度随时间的演变情况明显不同。该结果为确定氩第三谱带中 240 nm 附近的光谱辐射来源于 Ar_2^+ 离子准分子的跃迁提供了重要的依据。此外理论上还讨论了各反应过程对离子准分子形成和猝灭的影响。理论计算结果表明, Ar_2^+ 和 Ar_2^{2+} 离子准分子主要形成过程是前驱粒子与氩原子的三体碰撞过程, 主要猝灭过程是电子和氩原子与离子准分子的碰撞过程。

参 考 文 献

- 1 G. Klein, M. J. Carvalho. Argon luminescence bands between 1600 and 2900 Å [J]. *J. Phys. B: At. Mol. Phys.*, 1981, **14**(8): 1283~1290
 - 2 H. Langhoff. The origin of the third continua emitted by excited rare gases [J]. *Opt. Commun.*, 1988, **68**: 31~34
 - 3 C. Cachoncinlle, J. M. Pouvesle, F. Davanloo *et al.*. Third continuum of argon in high pressure plasmas excited by dielectric controlled discharge [J]. *Opt. Commun.*, 1990, **79**: 41~44
 - 4 A. M. Boichenko, V. F. Tarasenko, A. V. Fedenev *et al.*. Influence of rare-gas impurities on the emission of the third continua [J]. *Quantum Electron.*, 1997, **27**: 679~685
 - 5 W. Krotz, A. Ulrich, B. Busch *et al.*. Third excimer continuum of argon excited by a heavy-ion beam [J]. *Phys. Rev. A*, 1991, **43**(11): 6089~6094
 - 6 Zhao Yongpeng, Wang Qi, Liu Jincheng. Study on the optimum conditions of the third continuum of argon pumped by electron beam [J]. *IEEJ, Trans. Fundamentals and Materials*, 2004, **124**(6): 519~522
 - 7 M. Schumann, H. Langhoff. Kinetic studies of ionic excimers [J]. *J. Chem. Phys.*, 1994, **101**(6): 4769~4777
 - 8 A. M. Boichenko, V. F. Tarasenko, S. I. Yakovlenko. About the nature of third continua in rare gases [C]. *SPIE*, 2000, **4071**: 255~269
 - 9 Zhao Yongpeng, Wang Qi, Liu Jincheng. Kinetics on Ar_2^+ ionic excimer pumped by electron beam [J]. *Chinese J. Lasers*, 2003, **30**(5): 391~394
- 赵永蓬, 王 骐, 刘金成. 电子束抽运 Ar_2^+ 离子准分子的动力学过程 [J]. *中国激光*, 2003, **30**(5): 391~394