

# 三原子准分子 $Kr_2F$ 激光的实验研究

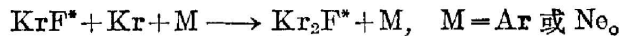
郭振华 F. K. 梯特尔 W. L. 威尔逊 M. C. 斯梅岭  
(华中工学院) (美国莱斯大学)

## 提 要

本文报道电子束泵浦的三原子稀有气体卤化物准分子  $Kr_2F$  激光的一些实验结果。观测了混合气体 Ar(或者 Ne, Kr, He)/Kr/NF<sub>3</sub>(或者 F<sub>2</sub>)/N<sub>2</sub> 在不同混合比例时的激光运转情况。还进而研究了气体温度对激光发射特性的影响。

人们对于各种宽带三原子准分子  $Rg_2X^*$  的特性,以及相应的双原子稀有气体卤化物准分子  $RgX^*$  激光和它们的提取效率有着浓厚的兴趣。这种三原子准分子中第一个显示出激光作用的是  $Xe_2Cl^{[1,2]}$ , 后来又报道三原子稀有气体卤化物  $Kr_2F$  的激光现象<sup>[3,4]</sup>。本文的主要目的是从实验上探讨中心波长为 420 nm 的  $Kr_2F$  蓝色可调谐激光的最佳运转条件。

文献[5,6]中讨论了三原子准分子  $Kr_2F$  的主要形成动力学过程,通过三体碰撞  $KrF(B)$  和  $Kr$  形成三原子准分子  $Kr_2F$  的蓝色发射:



由  $Kr_2$  代替  $KrF^*$  直接产生  $Kr_2F^*$  的可能性在文献[4]中亦有报道。 $Kr_2F$  准分子激光的最佳化利用了它的荧光时间分辨和光谱分辨研究结果,由此得到了激光猝灭特性参数,荧光产额以及小信号增益。荧光资料还提供了中心跃迁波长  $\lambda$ ; 发射带宽  $\Delta\lambda$ (FWHM); 发射寿命  $\tau$ ; 激发态密度  $N^*$ , 这四个参量中,  $\lambda$ 、 $\Delta\lambda$  可以由荧光光谱决定,  $\tau$  由实验上观测到的荧光衰减时间扣除猝灭效应后得到,  $N^*$  可以从荧光强度估算。

小信号增益  $g$  由文献[6]给出为

$$g = N^* \sigma = \frac{1}{4\pi} \left[ \frac{\ln(2)}{\pi} \right]^{1/2} \frac{\lambda^4}{c\tau\Delta\lambda} N^* \quad (1)$$

其中  $c$  是光速,  $\sigma$  是用  $cm^2$  作单位的受激发射截面,其它四个参量同上述。

从时间分辨资料还可得到另外一些与相应动力学过程有关的数据,由此已经建立起一个动力学模型<sup>[7,8]</sup>。显然,光学增益和动力学资料两者对预言激光特性是十分有用的。

## 一、荧光研究

为了获得最大的激光输出,我们在实验上系统地检验了不同的混合气体以便决定它们的最佳组合成分,同时还引入了多种光学系统。在本工作中使用的仪器设备与文献[1,9]中的描述基本一致。图1示出了  $Kr_2F$  的光谱曲线,它们相应于 8 atm Ar, 400 Torr Kr 和 10 Torr NF<sub>3</sub> 组成的混合气体。 $KrF$  混合气体为 8 atm Ar/20 Torr Kr/10 Torr NF<sub>3</sub> 在

KrF(C→A), Kr<sub>2</sub>F 的宽带跃迁和 KrF(B→X) 的窄带跃迁之间的波谱差别是最重要的特点。作为参考, 准分子对应的三类能级图已在图 1 中给出。中心波长为 280 nm 和 420 nm 的宽带发射 (~70 nm 宽) 分别是 C→A 束缚—自由型跃迁和三原子准分子跃迁的结果, 相反的, B→X 发射相应于束缚—弱束缚型跃迁, 因此拥有很窄的发射带 (~2 nm)。

由于 KrF(C→A) 跃迁和 Ar<sub>2</sub>F 跃迁落入同一个光谱范围 (~280 nm), 所以有的时候 KrF(C→A) 荧光是利用 Kr(或者 Ne) 代替 Ar 作为缓冲气体得到的, 这样可以避免使用 Ar 作为缓冲气体时出现的 Ar<sub>2</sub>F 发射干扰。被研究过的不同混合气体组成浓度所覆盖的范围是: 卤化物施主 NF<sub>3</sub> 从 1.0~16.0 Torr, 稀有气体 Kr 从 100~600 Torr, 缓冲气体 Ar 从 1~12 atm, 每种气体成分对 Kr<sub>2</sub>F 荧光的具体影响讨论如下:

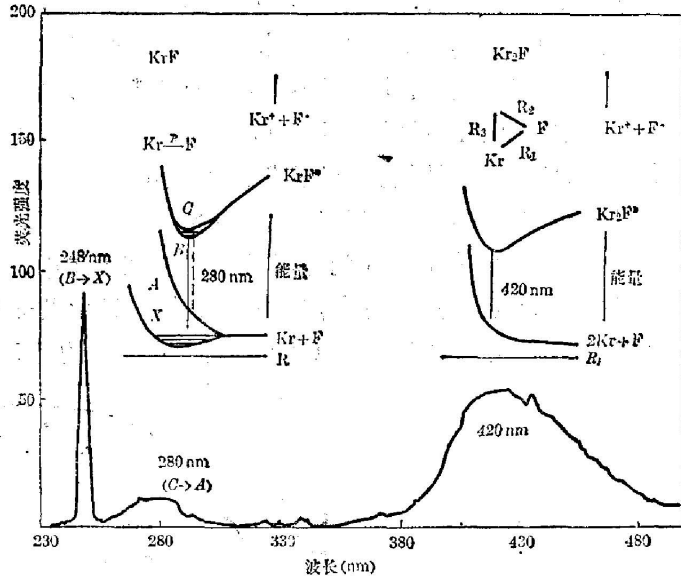


图 1 KrF(B→X), KrF(C→A) 和 Kr<sub>2</sub>F 的荧光谱和能级图  
Fig. 1 Fluorescence spectrum and energy level diagram of KrF(B→X), KrF(C→A), and Kr<sub>2</sub>F

Kr<sub>2</sub>F Kr<sub>2</sub>F 荧光对 NF<sub>3</sub> 的依赖关系示于图 2, 图中 (a) 和 (b) 分别表明氟化物施主对三原子准分子的形成速率和猝灭两方面都有强烈影响。当稀有气体混合物中含有 9~10 Torr

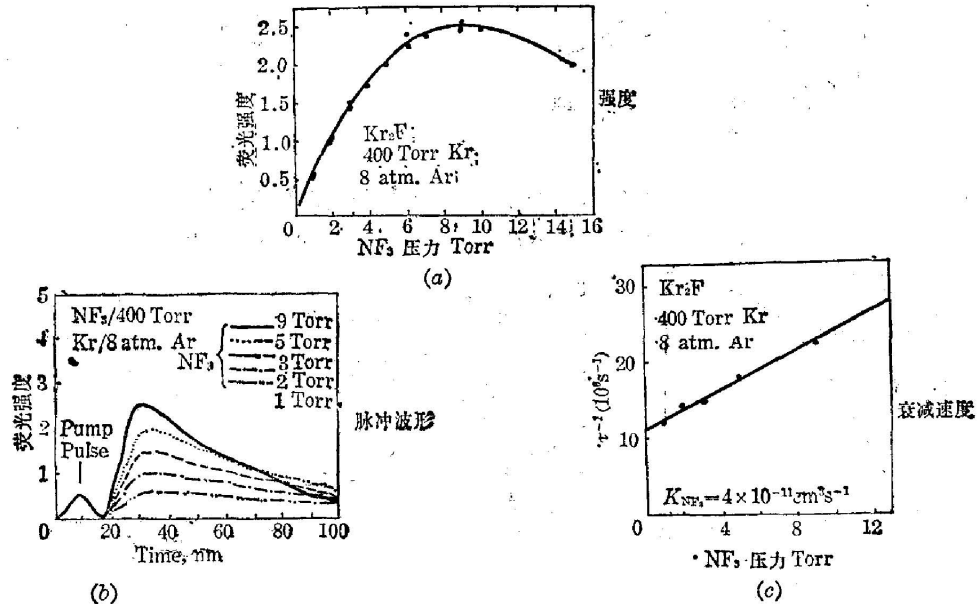


图 2 NF<sub>3</sub> 分压力对 Kr<sub>2</sub>F 荧光强度的影响  
Fig. 2 Effect of NF<sub>3</sub> concentration on Kr<sub>2</sub>F fluorescence

NF<sub>3</sub> 时, 荧光产额是最大的。NF<sub>3</sub> 对 Kr<sub>2</sub>F\* 的猝灭作用比 F<sub>2</sub> 的猝灭作用小很多(大约小一个数量级)。此外, 三原子准分子的形成时间比电子束泵浦脉冲延迟了大约 20 ns, 图 2(c) 绘出了 Kr<sub>2</sub>F 的衰减速率, 由图的斜率可以测量出猝灭常数  $k_{NF_3} = 4 \times 10^{-11} \text{ cm}^3 \text{ sec}^{-1}$ 。

Kr 当变化混合气体中 Kr 的浓度时 [图 3(a), 3(b)], 在 500 Torr 以上尽管荧光强度达到了某一恒定的数值。但是并未出现明显的强度峰值。Kr 对 Kr<sub>2</sub>F\* 微小的猝灭作用示于图 3(c), 由此仅仅估计出了 Kr 的猝灭常数上限为  $10^{-14} \text{ cm}^3 \text{ sec}^{-1}$ 。

Ar 当变化缓冲气体(例如 Ar)的压力时, 在高 Ar 气压下, 观测到了饱和效应, 这是由于 Kr<sub>2</sub>F 的形成受到限制或者激发态分子氩的吸收造成的 [图 4(a)], Ne (或者 Kr) 也曾作为缓冲气体进行了试验, 但结果却使荧光强度降低了。

Kr<sub>2</sub>F 荧光的光谱和时间分辨数据汇总在表 1 中, 表中列出了猝灭常数和计算出的寿命为  $145 \pm 25 \text{ ns}$ , 利用这一寿命值和光谱数据以及由荧光光强估算出的  $N^*$ , 我们用方程 (1) 概算小信号增益  $g$ , 当  $N^* = 2 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$  时,  $g$  值大约是  $1.3\% \text{ cm}^{-1}$ 。

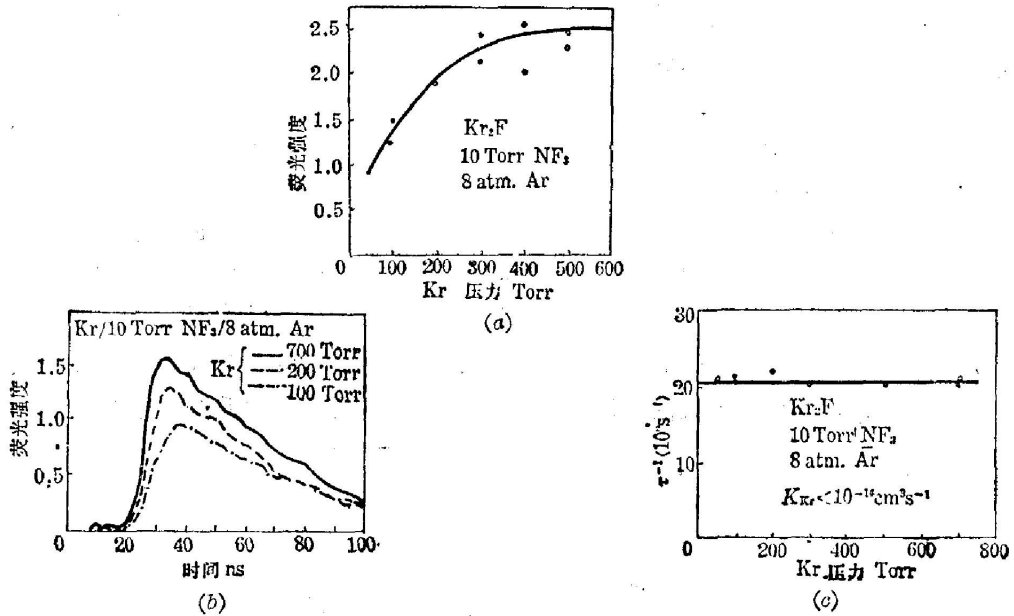


图 3 Kr 分压力对 Kr<sub>2</sub>F 荧光强度的影响

Fig. 3 Effect of Kr concentration on Kr<sub>2</sub>F fluorescence

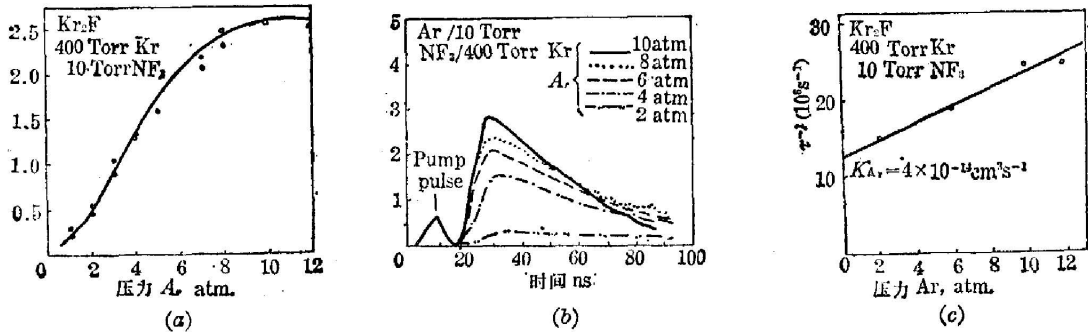


图 4 Ar 分压力对 Kr<sub>2</sub>F 荧光强度的影响

Fig. 4 Effect of Ar concentration on Kr<sub>2</sub>F fluorescence

表 1 Kr<sub>2</sub>F\* 形成与衰减过程小结Table 1 Summary of Kr<sub>2</sub>F\* formation and decay processes

反 应 式	速 率 常 数	参 考 文 献
$Kr^* + F_2 \longrightarrow Kr_2F^* + F$	$7.2 \times 10^{-10} \text{ cm}^3\text{s}^{-1}$	[12]
$KrF^* + 2Kr \longrightarrow Kr_2F^* + Kr$	$2.9 \times 10^{-31} \text{ cm}^6\text{s}^{-1}$	[13]
	$9.7 \times 10^{-31} \text{ cm}^6\text{s}^{-1}$	[14]
	$6.4 \times 10^{-31} \text{ cm}^6\text{s}^{-1}$	[15]
$Kr_2F^* + F_2 \longrightarrow \text{products}$	$4.3 \pm 0.4 \times 10^{-10} \text{ cm}^3\text{s}^{-1}$	[13]
	$4.1 \pm 0.5 \times 10^{-10} \text{ cm}^3\text{s}^{-1}$	[14]
$Kr_2F^* + NF_3 \longrightarrow \text{products}$	$4 \times 10^{-11} \text{ cm}^3\text{s}^{-1}$	[1]
	$6 \times 10^{-10} \text{ cm}^3\text{s}^{-1}$	[4]
$Kr_2F^* + Kr \longrightarrow \text{products}$	$< 2.0 \times 10^{-14} \text{ cm}^3\text{s}^{-1}$	[13]
$Kr_2F^* + Ar \longrightarrow \text{products}$	$4 \times 10^{-14} \text{ cm}^3\text{s}^{-1}$	[16]
	$2 \times 10^{-14} \text{ cm}^3\text{s}^{-1}$	[14]
	$7 \times 10^{-14} \text{ cm}^3\text{s}^{-1}$	[4]
$Kr_2F^* \longrightarrow 2Kr + F + h\nu(420 \text{ nm})$	$145 \pm 25 \text{ ns}$	[16]
	$181 \pm 12 \text{ ns}$	[13]
	$150 \text{ ns}$	[14]
	$132(\text{calc}) \text{ ns}$	
	$185 \pm 20 \text{ ns}$	[4]

## 二、激 光 研 究

激光实验需要在反应室内建立一个谐振腔,这就给系统附加上一个新的变量。因为谐振腔的准直强烈地影响着激光振荡的强度,所以只有用谨慎地准直程序来控制这种影响。设计出的宽带介质膜用于产生尽可能多的跃迁带宽。由于低增益和泵浦感应吸收的存在,到目前为止, Kr<sub>2</sub>F 呈现出的激光振荡与另外两种宽带准分子激光 XeF(C→A) 和 Xe<sub>2</sub>OI 相比要弱的多。

图 5 示出了高分辨率激光光谱和时间分辨特性。光谱带宽变窄是明显可见的,从荧光时的 ~70 nm 变化到激光发射时的 25 nm,在激光波谱图中还呈现出增强了的强烈腔内吸收现象,使用中心波长为 425 nm 的镜片时,还观察到了约 15 nm 的红移。激光时间分辨输出峰值仅仅呈现出一点点增加,这是由于不多的腔内渡越、低透过率输出耦合镜和感应吸收效应等造成的结果。

我们鉴定的气体组成范围包括: NF<sub>3</sub> 从 1~30 Torr; Kr 从 100~800 Torr; Ar 从 1~12 atm,有关每种气体成分对激光输出的影响讨论:氟化物施主的分压力变化时,对 Kr<sub>2</sub>F

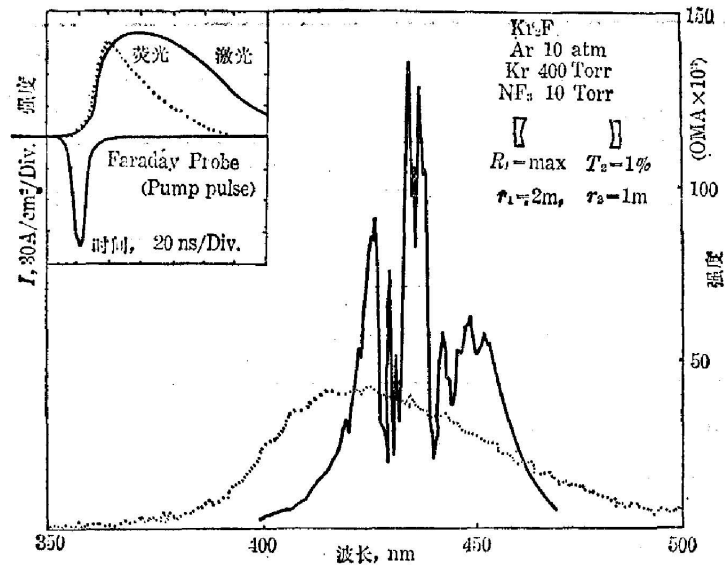


图 5  $Kr_2F$  的激光和荧光光谱  
Fig. 5  $Kr_2F$  laser and fluorescence spectra

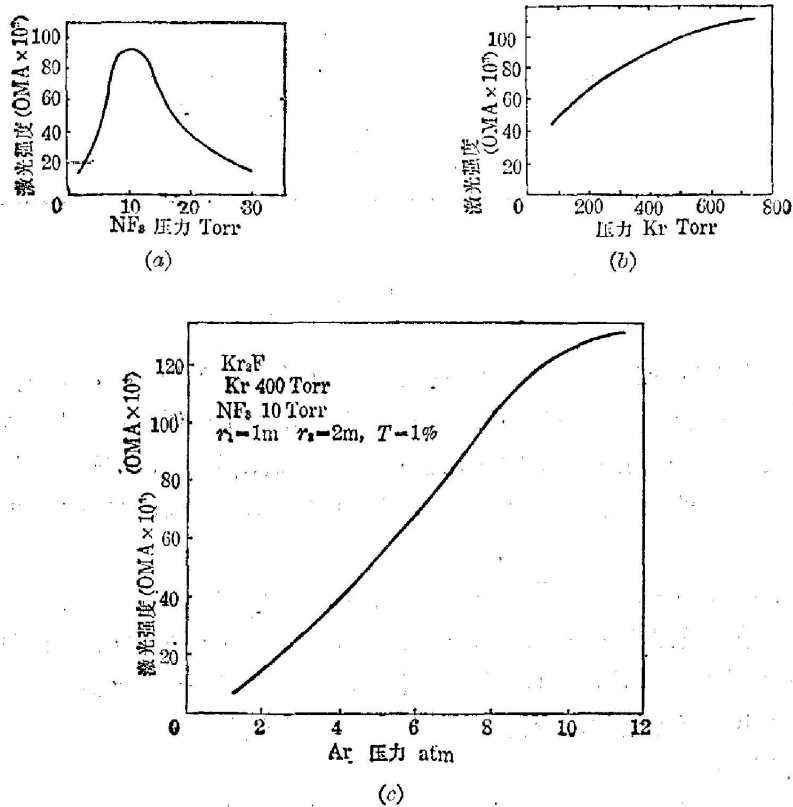


图 6  $Kr_2F$  激光对  $NF_3$ , Kr 和 Ar 分压力的依赖关系  
Fig. 6 Effect of  $NF_3$ , Kr, and Ar on  $Kr_2F$  laser

激光是最有影响的。激光输出峰值发生在 NF<sub>3</sub> 为 10 Torr 时[图 6(a)], 随着 NF<sub>3</sub> 浓度的增加, 它的猝灭作用降低了 Kr<sub>2</sub>F 激光态的居留数密度。同时也存在着被 NF<sub>3</sub> 和它的副产品吸收的迹象, 这些可能正是 NF<sub>3</sub> 增加到 10 Torr 以上时, 光强减弱的原因。图 6(b) 绘出了 Kr<sub>2</sub>F 激光对 Kr 浓度的依赖关系 Kr 的分压力在 200~800 Torr 范围内变化时, 激光输出没有发现极大值存在, 但 Kr 分压力增加到 8 atm 时, 光强逐渐地增加。氩缓冲气体分压力的影响示于图 6(c), 这和其它三原子准分子激光的情况相类似。在所研究的压力范围内, 没有发现输出峰值。我们使用的装置只允许气压限制在 12 atm 以下。

Kr<sub>2</sub>F 激光的特性小结于表 2, 同时列出了它的荧光资料以便于比较。

表 2 Kr<sub>2</sub>F 激光资料小结

Table 2 Summary of Kr<sub>2</sub>F laser data

	$\lambda$ (nm)	$\Delta\lambda$ (nm)	$t$ (ns) 落后于电子束脉冲	$\Delta t$ (FWHM) ns 脉宽
激 光	436	25	35	50
荧 光	420	70	14	—

### 三、吸收效应

在电子束泵浦高压稀有气体卤化物混合气体时, 分子的和原子的吸收都已经被辨认出来了<sup>[1]</sup>, 氩亚稳态原子吸收在激光波谱中是清楚而又明显的。在图 7 中, 给出了稀有气体

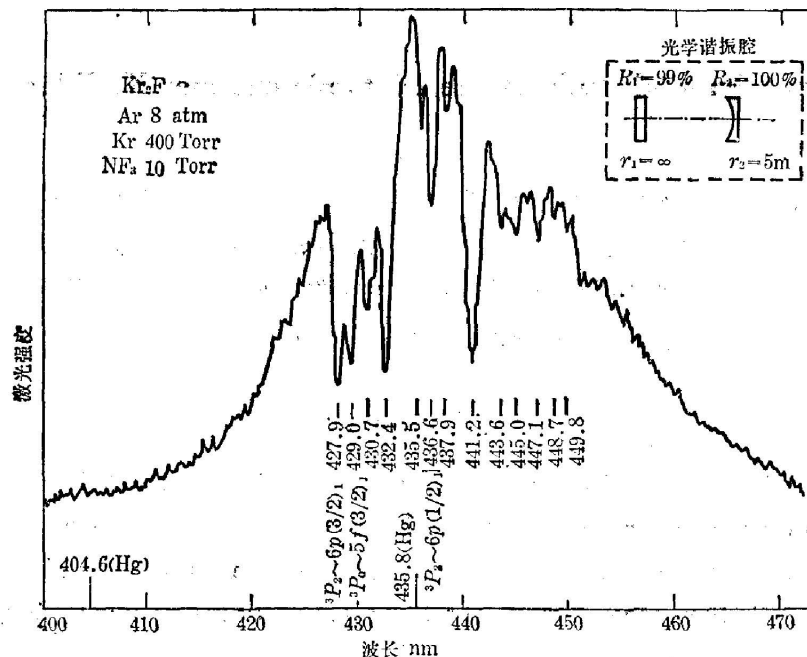


图 7 高分辨率 Kr<sub>2</sub>F 激光光谱显示出的 Kr\* 亚稳态吸收线

Fig. 7 High resolution Kr<sub>2</sub>F laser spectrum showing absorption lines of Kr\* metastable states

Kr\* 亚稳态原子的多种吸收, 其中有几条吸收线已被认出是从 Kr\* 亚稳态到高 Rydberg 态<sup>[10]</sup>的跃迁, 这些谱线对应于  $^3P_2 \rightarrow 6p(3/2)_1$ ,  $^3P_0 \rightarrow 5f(3/2)_1$  和  $^3P_2 \rightarrow 6p(1/2)_1$  跃迁, 在图上用小矢标出。其它未被认出的谱线可能是由于反应副产品引起的吸收。

我们曾经使 Kr<sub>2</sub>F 激光振荡在 -55°C 条件下运行, 试图把吸收移动到足够低的波长范围去, 以此来减少吸收的影响。但是在荧光和受激发射中都没有观察到足够的改变。如果添加少量的 N<sub>2</sub> 到混合气体中去, 则与 Xe<sub>2</sub>OI 激光相类似<sup>[11]</sup>, 某些吸收线就消失了。

### 参 考 文 献

- [1] F. K. Tittel *et al.*; *IEEE J. Q. E.*, 1981, **QE-17**, No. 12 (Dec), 2268.
- [2] F. K. Tittel *et al.*; *A. P. L.*, 1980, **37**, No. 10 (Nov), 862.
- [3] В. С. Зуев и т. д. «Квантовая Электроника», 1981, **8**, № 10 (окт), 2183.
- [4] A. Luches *et al.*; *Opt. Commun.*, 1982, **44**, 109.
- [5] T. H. Johnson *et al.*; *J. Appl. Phys.*, 1980, **51**, No. 5 (May), 2406.
- [6] C. K. Rhodes, ed., «*Excimer Lasers*», Springer-Verlag, Berlin, 1979.
- [7] G. Marowsky *et al.*; *J. Chem. Phys.*, 1981, **75**, No. 3 (Aug), 1153.
- [8] 郭振华等; «激光», 1983, **10**, No. 10 (Oct), 658.
- [9] 郭振华等; «激光与红外», 1983, **8** (Aug), 33.
- [10] E. Zamir *et al.*; *IEEE J. Q. E.*, 1979, **QE-15**, No. 5 (May), 281.
- [11] R. Sauerbrey *et al.*; *IEEE J. Q. E.*, 1982, **QE-18**, No. 9 (Sep), 1336.
- [12] J. E. Velasco *et al.*; *J. Chem. Phys.*, 1978, **69**, 4357.
- [13] G. P. Quigley *et al.*; *A. P. L.*, 1978, **32**, No. 10 (May), 649.
- [14] J. F. Eden *et al.*; *IEEE J. Q. E.*, 1979, **QE-15**, No. 10 (Oct), 1146.
- [15] M. Rokni *et al.*; *Phys. Rev.*, 1977, **16-A**, No. 1 (Dec), 2216.
- [16] W. R. Wadt *et al.*; *J. Chem. Phys.*, 1978, **68**, 3580.

## Experimental study of the triatomic excimer Kr<sub>2</sub>F laser

GUO ZHENHUA

(Huazhong University of Science and Technology Wuhan, China)

F. K. TITTEL W. L. SILSON JR. AND M. C. SMAYLING

(Dept. of Electrical Engineering, Rice University Houston, TX 77251, USA)

(Received 26 October 1983; revised 30 January 1984)

### Abstract

Experimental results of a triatomic noble gas halide excimer Kr<sub>2</sub>F laser pumped by an electron beam are reported. Such a laser has been operated using high pressure mixtures composed of optimized ratios of Ar (or Ne, Kr, and He), Kr, and NF<sub>3</sub> (or F<sub>2</sub>), and N<sub>2</sub>. Furthermore, the effect of gas temperature upon the Kr<sub>2</sub>F\* emission characteristics was investigated.