

Ar 中抖动现象观察*

王 骥 张杉杉** 周 赤 马祖光

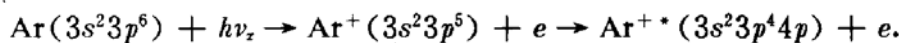
(哈尔滨工业大学光电子技术研究所, 哈尔滨 150001)

摘 要 本文叙述了利用准分子紫外激光打靶产生的软 X 射线激励(LPX)所观察到的 Ar 中抖动(Shake-up)现象. 对 $Ar^+ 3p^4 4p$ 与下能态跃迁产生的 68 条谱线进行了识别, 标定, 除两条谱线没观察到外, 其余所有可能产生的跃迁谱线都已被观察到.

关键词 抖动现象, Ar, LPX 激励.

1 引 言

抖动现象是一种由单光子引起的双电子激励过程, 或解释为“双光子光电离过程”^[1,3], 国内有人解释为摔激过程^[2]. 这一过程通常是吸收一个处于真空紫外/极紫外(VUV/XUV)波段光子, 首先使原子电离, 然后将另一电子激励到激发态, 即使原子处于离子的激发态的过程. Ar 中抖动现象如图 1 所示, 软 X 射线首先将 Ar 原子基态 $3s^2 3p^6$ 的一个 $3p$ 电子光电离, 产生 Ar^+ 基态 $3s^2 3p^5$, 然后通过一个双电子抖动过程(即 $3p$ 电子与 $4p$ 电子之间的相关作用)使 Ar^+ 从基态激发到 $3p^4 4p$ 态, 第一步过程需要的能量是 15.7 eV, 第二步过程需要的能量为 19.3~24 eV, 按 Silfvast^[1] 所述, 该过程是单光子过程. 即:



这时要求泵浦光子能量为 35~40 eV. 可见这种过程所需的光子能量一般较高, 通常处于 VUV/XUV 波段. 于是这种激励过程可获得离子激发态布居而产生离子跃迁, 从而获得短波长激光, 甚至是产生 VUV/XUV 波段激光的一种手段. 文献[3]中预言了利用抖动过程可获得 Li 的 165.3 nm 和 113.2 nm 输出.

1986 年 Silfvast^[1] 首次报道了 Ar 中抖动过程的理论与实验研究. 其实验研究重点在于测到了 $3p^4 4p$ 态 Ar^+ 粒子数集居, 文中没有给出来自于 Ar 中抖动过程的荧光谱图.

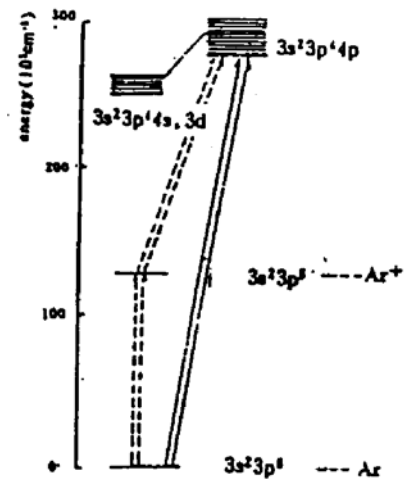


Fig. 1 Diagram of Shake-up processes

* 国家自然科学基金及国家 863 强激光技术资助课题.

** 现地址: 郑州邮电研究所.

收稿日期: 1993 年 8 月 5 日; 收到修改稿日期: 1993 年 10 月 4 日

本文利用准分子激光打高 Z 材料 Ta 靶所产生的软 X 射线再去激励 Ar 原子, 获得 Ar 中抖动过程, 也就是使 Ar 原子电离后再激发到 $3p^4 4p$ 态, 它与下能级所有可能的跃迁谱线(除两条谱线没看到外)都被观测到. 这一现象的观测, 一方面证实了抖动过程, 同时, 也可作为获得激光打靶产生软 X 射线能量分布的一个实验验证, 也是一个很好的用激光打靶产生软 X 射线及用抖动或抖掉(Shake-off)过程激励获得极紫外激光的实验探讨.

2 实验装置

实验装置如图 2 所示. 准分子激光器输出的波长为 308 nm、能量为 300 mJ、脉宽为 27 ns. 靶室由不锈钢制成, 在水平面内有四个臂. 呈十字交叉型, 激光入射臂约 30 mm, 为防止入射激光的后向反射损坏激光器输出耦合窗, 入射窗被倾斜成一角度(本装置为 13°), 与水平面相垂直方向四臂交叉处有一个第五臂, 长约 50 mm, 用于观察靶面情况. 金属靶选用高纯高 Z 材料, 一般用 Ta 或 W. 实验中 Ta 靶 ϕ 18 mm、厚 0.2 mm, 置于靶座上, 靶面位置距探测臂中心轴线为 5 mm, 靶座是可旋转的, 用一小电机, 通过磁力拖动装置带动靶室内轴旋转, 该轴支承并带动靶座, 磁力拖动可保证靶室真空密封. 打靶激光入射与靶面法线稍有夹角, 以保证溅射物质尽量少

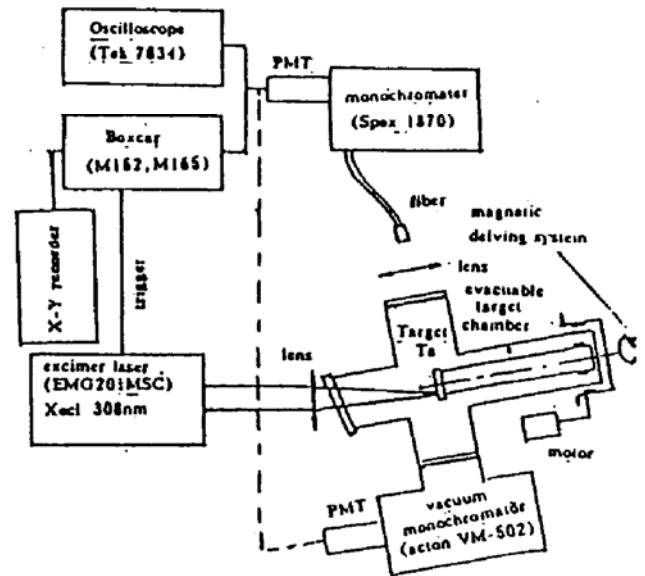


Fig. 2 Experimental setup.

污染靶室入射窗口. 打靶聚焦透镜为一消像差透镜组, 焦长分别为 $f_1 = 71.73$ mm, $f_2 = 282.5$ mm 及 $f = 100$ mm、130 mm 的各种单透镜, 利用不同焦长透镜可获得焦点处不同的功率密度, 激光聚焦后焦斑为 0.23 mm \times 0.82 mm 和 0.89 mm \times 3.25 mm, 故打靶功率密度分别为 4.1×10^9 W/cm² 和 2.96×10^8 W/cm². 对可见光波段探测系统, 用 Spex 1870 单色仪和 RCA 8852 光电倍增管; 用与靶室真空联接的真空紫外单色仪 (VM-502, Acton 公司) 和涂水扬酸钠的光电倍增管探测软 X 射线的分布. 信号处理用 Boxcar (M162, M165). 靶室内充 2 kPa、纯度为 99.995% 的 Ar 气.

3 主要实验结果

1) 打靶功率密度为 4×10^9 W/cm² 时, 软 X 射线强度分布实测结果如图 3(a) 所示. 从图中可以看到, 峰值波长在 $\lambda = 60 \sim 70$ nm 处. 图 3(b) 给出了本实验打靶功率密度下电子温度 $T = 4.1$ eV 等离子体辐射光通量 $F(E) \sim E$ 曲线和 Ar 的光电离截面 $\sigma(E) \sim E^{[1]}$ 曲线, (下面介绍电子温度计算方法). 从图中可以看到位于 $35 \sim 38$ eV 的软 X 射线还是有足够的强度分布的. 这正是实现 Ar 中抖动过程所需要的极紫外光子能量. 从图 3(b) 又看到, Ar 的抖动过程截面在激励光子能量 $35 \sim 38$ eV 时还是很高的, 38 eV 处为极大值, 这也是本实验中观察到 Ar 中抖动过程的理论依据.

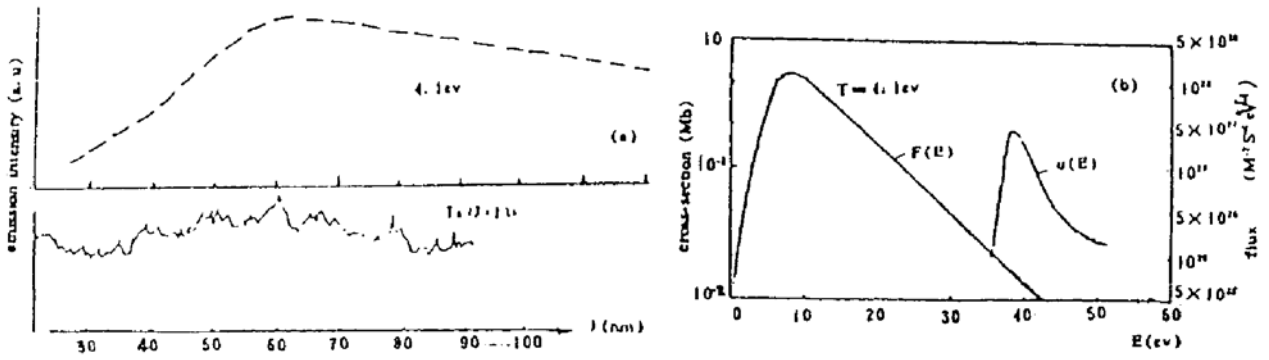


Fig. 3 Radiation distribution of LPX and the Shake-up cross-section

(a) LPX distribution, solid line-experimental result, dash line-theoretical cal.
 (b) Corresponding LPX flux and Shake-up cross-section of Ar^[1]

2) 图 4 给出了在 $4 \times 10^9 \text{ W/cm}^2$ 功率密度下, 由软 X 射线激励 Ar 获得的抖动过程的离子跃迁谱, 即 Ar⁺ 的 $3p^1 4p$ 能级向下跃迁的谱. 对图 4 中的谱, 作了初步的识别, 认为它来自于抖动过程, 表 1 为对应的跃迁波长表.

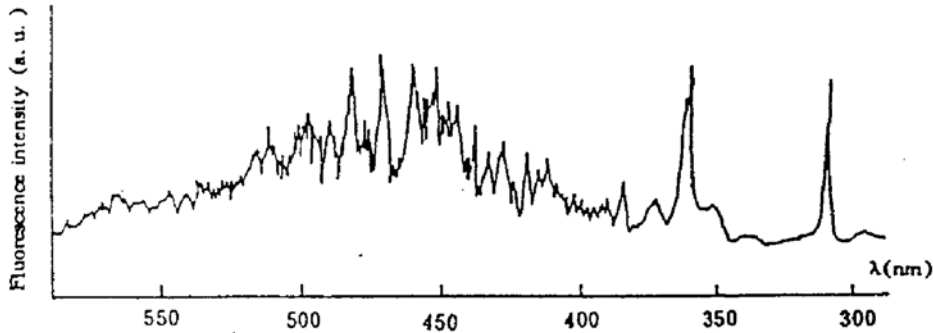


Fig. 4 Radiation spectra after the shake-up in Ar

3) 图 5、图 6 是为了判断图 4 的谱确实来源于 Ar⁺ 跃迁. 图 5(a) 为不充 Ar 时的谱图, 此时就看不到图 4 中测到的任何谱线. 图 6 为在降低功率密度时测到的谱. 由于功率密度降低, 软 X 射线分布的峰值将向长波方向移动, 即 35~38 eV 段的光子数大为减少, 因而 Ar 的抖动总跃迁几率会降低. 这时只有那些振子强度较大的跃迁谱线的出现, 振子强度较小的谱线不再出现, 所以图 6 中的谱线比图 4 中的谱线大为减少.

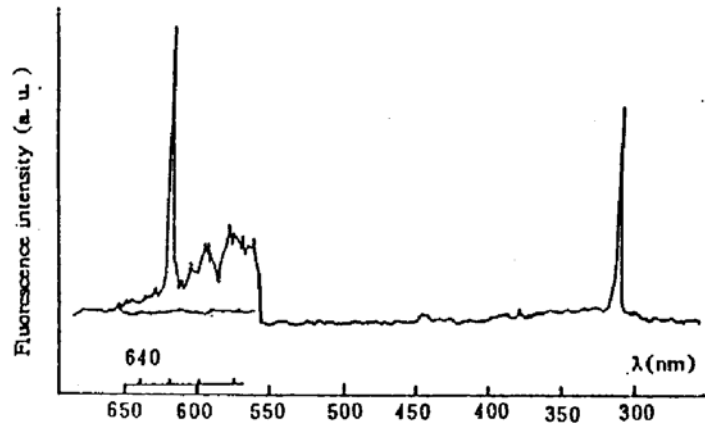


Fig. 5 (a) Spectra without Ar

(b) Spectra through a K9 glass at the incident slit of the monochromator

Table 1. Fluorescence wavelengths and corresponding energy levels of Ar⁺

wavelengths (nm)		upper levels (eV)	lower levels (eV)
437.595	457.935	$3p^4(^3P)4p^2S^0_{(\frac{3}{2}, \frac{3}{2})}$ (37.74)	$3p^4(^3P)4s^2P_{(\frac{3}{2}, \frac{3}{2})}$ (32.90, 33.03)
454.505	465.8	$3p^4(^3P)4p^2P^0_{(\frac{3}{2}, \frac{3}{2})}$ (35.56, 35.63)	$3p^4(^3P)4s^2P_{(\frac{3}{2}, \frac{3}{2})}$ (32.90, 33.03)
467.5	488.903		
472.686	488.0	$3p^4(^3P)4p^2D^0_{(\frac{3}{2}, \frac{3}{2})}$ (35.44, 35.52)	$3p^4(^3P)4s^2P_{(\frac{3}{2}, \frac{3}{2})}$ (32.90, 33.03)
496.507	513.4		
417.0	427.752	$3p^4(^1D)4p^2P^0_{(\frac{3}{2}, \frac{3}{2})}$ (37.11, 37.19)	$3p^4(^1D)4s^2D_{(\frac{3}{2}, \frac{3}{2})}$ (34.19, 34.22)
447.476	459.9	$3p^4(^1D)4p^2P^0_{(\frac{3}{2}, \frac{3}{2})}$ (37.11, 37.19)	$3p^4(^3P)3d^2D_{(\frac{3}{2}, \frac{3}{2})}$ (34.42, 34.49)
460.1	473.206		
453.055		$3p^4(^1D)4p^2P^0_{(\frac{3}{2})}$ (37.11)	$3p^4(^1D)4s^2F_{(\frac{3}{2})}$ (34.38)
436.201	437.1	$3p^4(^1D)4p^2D^0_{(\frac{3}{2}, \frac{3}{2})}$ (37.25, 37.26)	$3p^4(^3P)3d^2D_{(\frac{3}{2}, \frac{3}{2})}$ (34.42, 34.49)
	448.2		
413.6	430.909	$3p^4(^1D)4p^2D^0_{(\frac{3}{2}, \frac{3}{2})}$ (37.25, 37.26)	$3p^4(^3P)3d^2F_{(\frac{3}{2}, \frac{3}{2})}$ (34.26, 34.38)
360.5	361.181	$3p^4(^1D)4p^2P^0_{(\frac{3}{2}, \frac{3}{2})}$ (37.25, 37.26)	$3p^4(^3P)3d^2P_{(\frac{3}{2}, \frac{3}{2})}$ (33.70, 33.82)
458.990	460.9	$3p^4(^1D)4p^2F^0_{(\frac{3}{2}, \frac{3}{2})}$ (36.89, 36.90)	$3p^4(^1D)4s^2D_{(\frac{3}{2}, \frac{3}{2})}$ (34.19, 34.22)
	463.723		
468.228	471.1	$3p^4(^1D)4p^2F^0_{(\frac{3}{2}, \frac{3}{2})}$ (36.89, 36.90)	$3p^4(^1D)4s^2D_{(\frac{3}{2}, \frac{3}{2})}$ (34.19, 34.22)
490.5	493.608		
438.375	458.790	$3p^4(^3P)4p^4S^0_{(\frac{3}{2})}$ (35.73)	$3p^4(^3P)4s^2P_{(\frac{3}{2}, \frac{3}{2})}$ (32.90, 33.03)
465.7	473.591	$3p^4(^3P)4p^4P^0_{(\frac{3}{2}, \frac{3}{2}, \frac{3}{2})}$ (34.99, 35.02, 35.07)	$3p^4(^3P)4s^4P_{(\frac{3}{2}, \frac{3}{2}, \frac{3}{2})}$ (32.41, 32.51, 32.57)
480.6	484.8		
493.3	497.2		
501.0	506.204		
427.6	430.4		
433.1	433.203	$3p^4(^3P)4p^4P^0_{(\frac{3}{2}, \frac{3}{2}, \frac{3}{2})}$ (34.99, 35.02, 35.0)	$3p^4(^3P)3d^4D_{(\frac{3}{2}, \frac{3}{2}, \frac{3}{2}, \frac{3}{2})}$ (32.17, 32.19 32.21, 32.22)
435.2	437.1		
440.0	440.1		
442.1	446.056		
448.2			
413.3	417.837	$3p^4(^3P)4p^4D^0_{(\frac{3}{2}, \frac{3}{2}, \frac{3}{2}, \frac{3}{2})}$ (35.25, 35.31 35.37, 35.40)	$3p^4(^3P)4s^4P_{(\frac{3}{2}, \frac{3}{2}, \frac{3}{2})}$ (32.41, 32.51, 32.57)
426.7	428.3		
433.1	434.8		
438.0	442.6		
443.019	451.4		
453.0	462.2		
501.763	514.5	$3p^4(^3P)4p^4D^0_{(\frac{3}{2}, \frac{3}{2}, \frac{3}{2}, \frac{3}{2})}$ (35.25, 35.31, 35.37, 35.40)	$3p^4(^3P)4s^2P_{(\frac{3}{2}, \frac{3}{2})}$ (32.90, 33.03)
521.5	528.690		

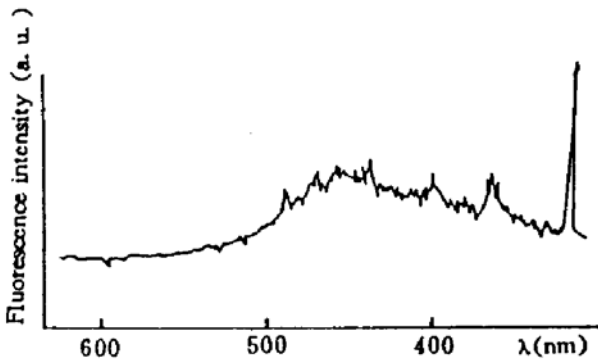


Fig. 6 Shake-up spectra in Ar with a lower laser power density

使 Ar^+ 激发态获得布居可以有两个途径, 一个是抖动过程, 另一个是两步过程, 即 Ar 电离后再激发. 前一途径所需的光子能量是 35~38 eV, 谱线出现的条数与这一段 XUV 光子强度关系非常大, 而第二种途径却不然, 由于它是两步过程(一步电离, 一步激发), 所需光子能量小于 20 eV 便可, 因此图 6 中谱线分布对光子强度的依赖关系与抖动过程是吻合的.

4) 图 5(b)是对图 4 中位于 550~616 nm 段谱线的解释、由此实验可以看到, 位于 550~616 nm 的谱是 275~300 nm 谱的二级谱, 并不

是抖动过程的跃迁谱, 为此进行了这样一个实验: 当用 K9 玻璃挡在单色仪入射狭缝前面, 位于 550~616 nm 这一段谱消失了, 其余谱没有什么变化, 这就足以证明这一段谱是二级谱, K9 玻璃相当于一个长通滤光片. 而位于 275~300 nm 这一段谱恰是等离子体辐射分布的长波部分.

4 分析与讨论

1) 激光产生等离子体辐射分布规律 目前对激光打靶产生的等离子体辐射特性的描述有几种模型. 但对于 $10^9 \sim 10^{11} \text{ W/cm}^2$ 较低功率密度打靶的等离子体辐射特性研究得较少.

文献[4,5]中对 $10^9 \sim 10^{11} \text{ W/cm}^2$ 功率密度下短波长打靶中等离子体电子温度总结出如下的经验关系式:

$$T(\text{eV}) = 4.8 \times 10^{-2} Z^{1/2} [\lambda (\mu\text{m})]^{1/10} [I(\text{W/cm}^2)]^{1/6} \quad (1)$$

用此公式计算本实验情况对应的电子温度为 $T_e = 4.1 \text{ eV}$ (用 XeCl_2 打靶). 而对应的等离子体辐射分布(等离子体辐射视为黑体辐射)正如前面图 3(a)虚线示与实测的分布情况对照, 基本上是符合的.

2) Ar 的抖动跃迁谱的标识 对图 4 荧光谱进行分析识别, 可确认都来自 Ar^+ 激发态间的跃迁, 进一步计算标识表明, 在 400~500 nm 这一波长范围内, 绝大多数谱线(包括那些最强的谱线), 都是 Ar^+ 的激发态 $3p^4 4p$ 向较低激发态的跃迁产生的, 根据 $L-S$ 耦合 $3p^4 4p$ 激发态能级分为 $3p^4(^3P)4p$, $3p^4(^1D)4p$ 和 $3p^4(^1S)4p$ 三组, 共有 21 个精细结构, 它们是

$$3p^4(^3P)4p: \quad {}^2S_{1/2}^0, {}^2P_{1/2, 3/2}^0, {}^2D_{3/2, 5/2}^0, {}^4S_{3/2}^0, {}^4P_{1/2, 3/2, 5/2}^0, {}^4D_{3/2, 5/2, 7/2}^0.$$

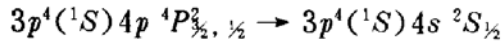
$$3p^4(^1D)4p: \quad {}^2P_{1/2, 3/2}^0, {}^2D_{3/2, 5/2}^0, {}^2P_{1/2, 3/2}^0$$

$$3p^4(^1S)4p: \quad {}^2P_{1/2, 3/2}^0.$$

这里“0”表示能级为奇态, 即离子内部各个电子的 l 量子数之和为奇数.

图 4 中标出的波长值与表 1 中给出的值相对应, 其中 6 位有效数字的波长是 Grotrian 能级图中直接查到的^[6], 4 位有效数字的波长值是根据文献[6]中给出的能级波数值计算出的. 从谱图中直接读出的波长值与理论值之间的偏差一般在 $\pm 0.2 \text{ nm}$ 之内, 造成这一偏差的主要原因是单色仪的分辨能力, 实验中单色仪开缝较大(一般在 $100 \sim 200 \mu\text{m}$)使分辨能力降低(在 $200 \mu\text{m}$ 时, 0.5 m 光栅单色仪, 1200 1/mm 光栅. 光谱分辨率为 0.33 nm).

上述谱线涉及到 $\text{Ar}^+ 3p^4 4p$ 态的 19 个能级, 只有两个能级的跃迁谱没有出现(或因强度太弱被噪声淹没). 这组跃迁是:



对应的波长是 399.48 nm 和 405.29 nm. 这两条谱线之所以没有出现可能是由于上能级所需能量太高, 分别是 39.56 eV 和 39.61 eV, 而实验中 XUV 辐射光子能量不足以使之激发或激发得太少的缘故. 实验测到谱线的跃迁上能级最高能量为 37.74 eV.

Ar 产生抖动过程的截面在文献[1]中有所讨论, 本文作者也用 Cowan 程序进行了计算, 其结果将另文介绍.

在所观察的谱区之外(甚至谱区之内), 还出现很多其它谱线, 作者认为, 这是由于在激光等离子体辐射激励 Ar 过程中, 还存在很多其它过程, 如 Ar 的一次电离、 Ar^+ 的激发态跃迁、甚至一些非线性过程, 这些过程与 Ar 的抖动过程同时发生, 因而造成了谱的复杂性, 本文对观察的谱区之外谱线的归属尚没有进行识别.

结 论 用 XeCl 准分子激光 308 nm 打 Ta 靶, 产生的激光等离子体软 X 射线辐射激励 Ar, 观察到位于 360~530 nm 范围内的辐射谱, 经初步分析认定属于 Ar 中抖动过程产生的 Ar^+ 能级间跃迁.

参 考 文 献

- [1] W. T. Silfvast, D. Y. Al-Salaneh, O. R. WoodII, Multielectron photoionization to the $3p^4 4p$ configuration of Ar^+ : Experiment and theory. *Phys. Rev.*, 1986, **34**(6): 5164~5167
- [2] 潘承瓚, 赵良仲编, 电子能谱基础. 北京, 科学出版社, 1981, 29
- [3] S. E. Harris, R. G. Care, Shake-up as a mechanism for vacuum-ultraviolet lasers. *Opt. Lett.*, 1986, **11**(1): 10~11
- [4] Jin Feng, B. Wellegehausen, Wang Qi *et al.*, Investigation on soft X-ray source from laser-produced plasma. *Fifth Interdisciplinary Laser Science Conference (ILS-V)*, Stanford California U. S. A. 1989, August 27~31 D916
- [5] B. Wellegehausen, B. Hube, Jin Feng, Investigations on laser plasma soft X-ray sources generated with low energy laser systems. *Appl. Phys.*, 1989, **B49**: 173~178
- [6] Stanley Bashkin, John O. Stoner. Jr. *Atomic energy levels and Grotrian Diagrams*, North-Holland Publishing Company-Amsterdam North-Holland Publishing Company, Ltd.-Oxford American Elsevier Publishing Company, Inc. New York, 1975

Observation of Shake-Up in Ar

Wang Qi Zhang Shanshan Zhou Chi Ma Zuguang

(*Institute of Opto-Electronics, Harbin Institute of Technology, Harbin 150001*)

(Received 1993; revised 1993)

Abstract The phenomenon of Shake-up in Ar excited by laser produced plasma (LPX) by using a beam of UV excimer laser injected onto a Ta target is described in this paper. The 68 transition lines originated from the $\text{Ar}^+ 3p^4 4p$ are identified among which 66 possible lines are observed in the experiments.

Key words Shake-up, Ar, LPX.