

氟化氩离子准分子真空紫外辐射*

周 亦 王 骥 李思宁 马祖光

(哈尔滨工业大学光电子技术研究所, 哈尔滨 150001)

摘 要 利用激光等离子体软 X 射线为激励源, 首次观察到离子性氟化氩准分子在 125 nm 附近的真空紫外辐射, 其实验结果与理论计算值符合很好。

关键词 离子准分子, 真空紫外辐射, 激光等离子体。

真空紫外和极紫外(VUV/XUV)波段的相干辐射研究是目前激光科学中的一个研究热点。在 100 nm 以下的波段中, 已利用强激光作驱动源, 通过电子碰撞机制^[1, 2]和复合机制^[3, 4]获得了类氦、类锂等多种离子的软 X 光激光。但在 100 nm 到 200 nm 之间的真空紫外波段内, 已实现的激光振荡仍很少。目前只有氟化氩准分子、氟分子及少数稀有气体准分子介质能产生这种激光。1985 年 Sauerbrey 和 Langhoff^[5] 及 Basov^[6, 7] 等人分别提出利用离子准分子产生真空紫外和极紫外波段激光的设想, 即利用非电中性的准分子, 产生类似于中性准分子束缚—自由跃迁的连续谱相干辐射, 且波长可短得多。理论预计的最短辐射波长可达 20 nm^[5]。近十年来, 已有十几种离子准分子在实验中被观察到^[8~15]。最近, 在这类介质中已观察到增益和激光振荡^[16, 17]。这里, 本文报道利用激光等离子体软 X 射线(LPX)为泵浦源, 首次观察到的氟化氩离子准分子 Ar²⁺F⁻ 真空紫外辐射。

1 理论考虑

1.1 离子准分子的基本原理

离子准分子理论的提出是基于分子或准分子等电子序结构的概念。以目前紫外和真空紫外波段内效率最高的激光介质——稀有气体卤化物准分子 Rg⁺X⁻ 为例, 其上能级为离子键结合的束缚态, 下能级为弱束缚态或排斥态。当它发生电荷交换时, 将产生束缚-自由跃迁, 并辐射出一个光子, 其过程可表示为:



Sauerbrey 等人的理论计算表明, 如果以一个与 Rg⁺ 具有等电子序结构的二价正离子, 即在元素周期表中位于 Rg 下一位置的碱金属原子二价正离子 A²⁺ 取代 Rg⁺, 则可形成一种碱

* 国家自然科学基金和 863 高技术激光技术领域资助项目。

收稿日期: 1995 年 6 月 15 日

金属卤化物的离子性准分子 $A^{2+}X^-$ ，其能级结构与中性准分子 Rg^+X^- 类似，且也可发生电荷交换的束缚-自由跃迁：



由于获得 A^{2+} 的电离能比 Rg^+ 的高，因此可以预料离子准分子的跃迁过程(2)中产生的光子要比相应的中性准分子跃迁过程(1)式中产生的光子能量高得多，即产生的辐射波长要短得多。同时，与中性准分子类似，离子准分子的辐射一般是连续或准连续的，很有希望作为可调谐的短波长激光介质。类似的离子准分子还有：稀有气体-碱金属离子准分子 ARg^+ 、稀有气体离子准分子 $Rg^{2+}Rg$ 以及稀有气体卤化物离子准分子 $Rg^{2+}X^-$ 等。更一般地，对于原子 A 和 B(可以是同种或异种原子)，基态离子 A^- 与原子 B 可能形成离子准分子的上能级 A^+B ，而下能级可以认为是发生电子交换跃迁后的 AB^+ 或 AB^{++} ，并可以很快解离。这种过程发生的必要条件是电离势 $I_A > I_B$ 。而上、下能级是否能真正存在，可以从理论上进行计算分析来预言。同样的原理也适用于高价离子形成的离子准分子和多种离子形成的离子准分子。Sauerbrey 等预言的 $Li^{2+}Li \rightarrow Li^-Li^+$ 离子准分子跃迁可能获得 20 nm 左右的辐射。

稀有气体卤化物离子准分子最早由 Sauerbrey 和 Langhoff 利用 Rittner 势进行过估算，其最短的辐射波长可在 $Ne^{2+}F^-$ 中获得，约为 64 nm。为了更精确地计算其跃迁参数，王骥等^[14]利用 ab initio 方法对 Rittner 势进行了修正，据此计算出的离子准分子 $Ar^{2+}F^-$ 的势能曲线如图 1 所示，相应的跃迁参数如表 1 所示。其辐射波长计算值为 121.9 nm，与 Sauerbrey 等人得到的 101 nm 相比，向长波方向有所移动。另外，计算得到的带宽为 9.15 nm，说明是连续谱。

Table 1. Theoretical result of transition parameters of $Ar^{2+}F^-$

wavelength	bandwidth	lifetime	stimulated emission cross-section
121.9 nm	9.15 nm	0.26 ns	$2.17 \times 10^{-17} \text{ cm}^2$

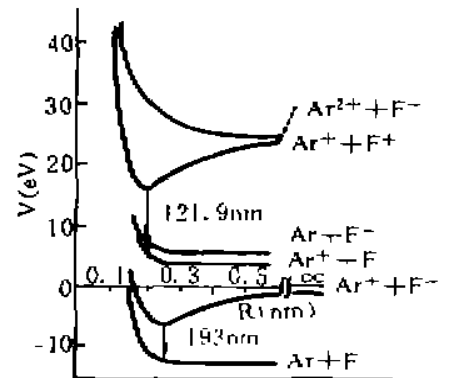


Fig. 1 Potential curves of ArF system

1.2 激光等离子体软 X 射线泵浦下离子准分子的形成

在激光等离子体软 X 射线泵浦下形成离子准分子 $Ar^{2+}F^-$ 的两个主要可能通道是：

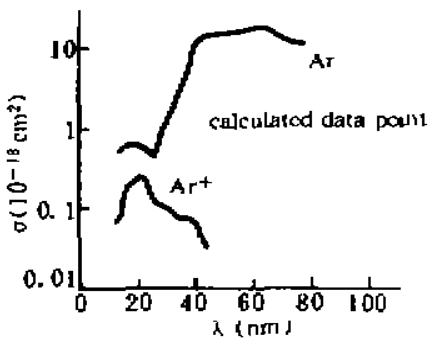
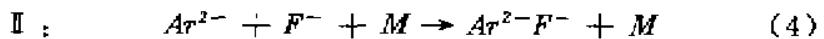
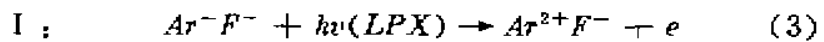


Fig. 2 Photoionization cross-sections of Ar and Ar^+

由于中性准分子 Rg^+F^- 在通常状态下是不存在的，一旦形成激发态后其寿命又很短(ns 级)，因此通道 I 的几率很小，而通道 II 起主要作用。因此，稀有气体二价离子 Ar^{2+} 的形成是很关键的。为了对激光等离子体软 X 射线激励下 Ar^{2+} 的产生有定量的估计，作者利用 Cowan 原子程序^[18]对 Ar 原子和 Ar^+ 离子的光电离截面进行了计算。该程序从非相对论薛定谔方程出发，通过哈特莱-福克方程的求解和角分布矩阵元的计算给出光电离截面。计算得到的 Ar 和 Ar^+ 光电离截面如图 2 所示。可以看到 Ar 原子光电离截面的峰值发生于 60.4 nm(20.52 eV)附近，约为 $1.77 \times 10^{-17} \text{ cm}^2$ 。而 Ar^+ 的光电离截面峰值

发生于 20.1 nm (61.66 eV) 附近, 约为 $2.41 \times 10^{-19} \text{ cm}^2$ 。这要求激光等离子体软 X 射线泵浦源在相应谱区内有足够强的辐射。

2 实 验

本实验的装置如图 3(a) 所示。一束调 Q Nd:YAG 激光经一组消象差透镜聚焦后, 入射到真空密封靶室的一个金属钽 (Ta) 靶上。Ta 靶由一个磁力拖动装置从密封靶室外部驱动旋转, 以便在每次激光脉冲到来时, 可提供一个新鲜的靶面。靶上的有效入射激光能量约为 500 mJ, 脉冲宽度为 15 ns, 以重复率 4 Hz 工作。入射到 Ta 靶面上的聚焦光斑直径约为 0.3 mm, 相应的功率密度为 $4.89 \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$ 。激光等离子体软 X 射线谱或周围被激励气体介质的荧光谱, 透过毛细管阵列输出窗或 LiF 窗片, 通过一个 0.5 m 真空紫外单色仪 (Acton VSN-515) 后, 由一个装有闪烁体的光电倍增管接收, 然后由 Boxcar 处理, 通过 X-Y 记录仪记录。

这种激光等离子体软 X 射线辐射激励源在短波长区域 (100 nm) 以下有很强的辐射, 其典型辐射谱的描述见文献 [20]。利用这种实验装置, 在 Ar 中曾观察到抖动 (Shake-up) 现象 [21]。由于这种过程要求光子能量激励源在 31~40 eV 的范围内, 因此可以说明使用的激光等离子体软 X 射线在此波段内有相当强的辐射。

为证实激光等离子体软 X 射线泵浦源的激励能力, 对 Ar 的真空紫外吸收谱进行了测量, 测量中采用毛细管阵列为输出耦合窗, 靶室内的 Ar 气缓慢流动, 压强维持 0.266 kPa 左右。测到的 Ar 吸收系数与吸收截面如图 4 所示, 测到的数据与理论计算值是相符的。可以看到, 在第二电离限以上时, 吸收系数呈上升趋势, 这显然由 Ar 的二次电离造成的。因此可以肯定在这种泵浦条件下可以产生 Ar^{2+} 离子, 即为离子准分子形成的第 II 条通道提供了条件。

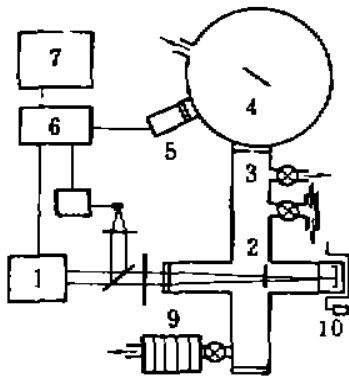


Fig. 3 Experimental setup

1-Nd:YAG, 2-Ta target, 3-LiF or capillary window, 4-0.5 m monochromator, 5-scintillator/PMT, 6-boxcar, 7-chart recorder, 8-optical trigger, 9-gas filters

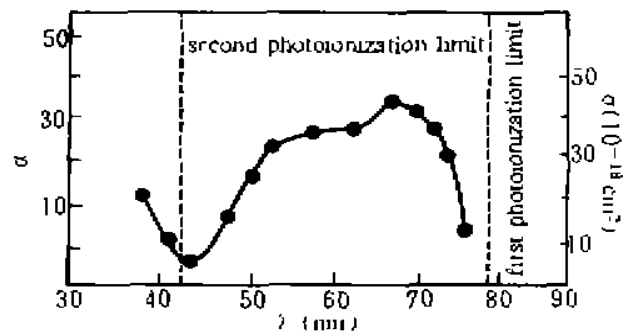


Fig. 4 Measured absorption coefficients and cross-sections in VUV region

在进行激光等离子体软 X 射线激光激励下离子准分子辐射谱的测量时, 需要排除激光等离子体软 X 射线谱的干扰。根据理论计算, Ar^{2+}F^- 离子准分子的辐射波长可能在 122 nm 附近。在此谱区内, 激光等离子体软 X 射线辐射绝大部分来自等离子体复合过程, 发生在等离子体形成后约 300 ns 左右 [13]。因此, 实验中采用一个光开关作为 Boxcar 的同步触发信号, 并仔细选择 Boxcar 取样门延迟及门宽, 使测量系统在取样时间上避开激光等离子体软 X 射线辐射本底。另外, 以激光等离子体软 X 射线为泵浦源时, 受激发的介质主要集中于等离子体外侧一个区域内。为增强被测的离子准分子信号, 实验中使真空紫外单色仪入射狭缝光轴与

等离子体中心偏离 15 mm。实验证明, 利用这种时间分离和空间分离的方法可以有效地消除激光等离子体软 X 射线辐射造成的干扰。

当靶室充以 Ar 6.0 kPa/He 5.6 kPa/F₂ 0.4 kPa 混合气体时, 在 114 nm~130 nm 的谱区发现有一个连续谱出现[图 5 (a)], 改变气体的配比为 Ar 4.0 kPa/He 3.7 kPa/F₂ 0.3 kPa 时, 得到的连续谱明显增强, 且扩展到 114 nm~135 nm[图 5 (b)]. 当实验充以 Ar/F₂/K₂ 混合气体, 并做出 125 nm 附近荧光光谱后, 立即将气体排掉, 在任何条件都不变的情况下, 特别在绝对不改变所有测量仪器的灵敏度的情况, 继续测量处于真空状态下的谱分布, 这主要观察等离子体辐射谱分布情况, 观察在 125nm 附近是否存在等离子体辐射谱, 即存在本底谱。实验证实在此段是不存在本底谱的, 随后立即充以气压为混合气体中气压的相同的 He/F₂(购买气体一般是 5%F₂+95%He 混合使用, 确保安全)气体, 随后充以同样气压的 Ar 观察, 单元气体时, 激光等离子体软 X 射线激励下, 位于 125 nm 区域谱情况, 实验观察证明, 这些单元成份在激光等离子体软 X 射线激励下, 在 125 nm 附近都不存在任何辐射谱, 仅在 Ar/He/F₂ 混合气体中才出现 125 nm 辐射谱, 证明此谱来自 Ar 与 F₂ 的混合气体, 由于中性准分子 ArF 辐射是 193 nm, 说明 125 nm 也不应是中性准分子辐射谱, 这说明它完全可能来源于 Ar²⁺F⁻ 离子准分子, 并因为与本文计算结果吻合得非常好, 这就进一步提供 125 nm 来源的证据。

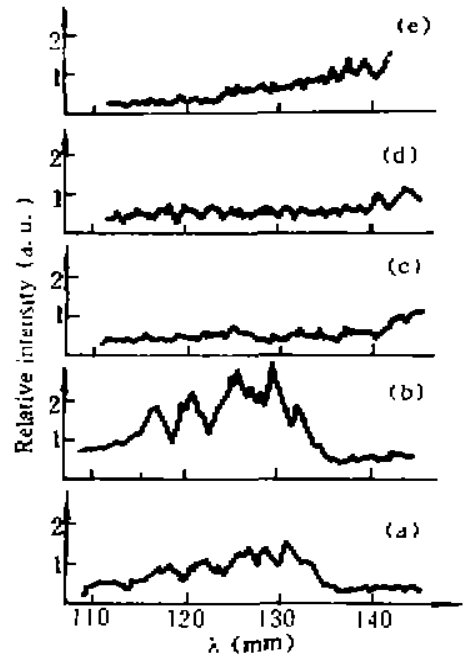


Fig. 5 Radiation at various conditions

(a) Ar 6.0 kPa/He 5.6 kPa/F₂ 0.4 kPa, (b) Ar 4.0 kPa/He 3.7 kPa/F₂ 0.3 kPa, (c) Vacuum, (d) He 3.7 kPa/F₂ 0.3 kPa, (e) Ar 4.0 kPa

3 结果与讨论

由前面理论计算获得的 Ar²⁺F⁻ 跃迁辐射峰值为 121.9 nm, 而实验中测得的峰值大约位于 125 nm 左右, 与 Sauerbrey 和 Langhoff 的理论计算值 101 nm 相比, 本文的理论计算与实验值吻合较好。说明用 *ab initio* 方法校正 Rittner 势的参数后, 其计算精度有明显提高。

从 Ar²⁺F⁻ 的辐射谱中可以看到, 其辐射最强峰值短波方向, 在 117 nm 和 122 nm 左右分别出现了较弱的次高峰。它们可以归结为上能级高动态产生的跃迁, 其结果是跃迁能增大, 波长变短, 与 Frank-Condon 原理相符。

气体气压增高时, 可以提高离子准分子的产额, 但同时会产生对离子准分子的猝灭和对离子准分子辐射的吸收。本实验中的气体配比在 Ar 4.0 kPa/He 3.7 kPa/F₂ 0.3 kPa 时 Ar²⁺F⁻ 辐射谱最强。

结 论 利用激光等离子体软 X 射线泵浦, 首次在实验上观察到了氟化氩离子准分子 Ar²⁺F⁻ 在 125 nm 附近的真空紫外连续谱辐射, 其结果与理论计算值符合得很好, 验证了文献[19]的理论工作的正确性, 证明采取 *ab initio* 修正方法对 Rittner 势的精度有很大改进。

稀有气体氟化物离子准分子辐射具有波长短、连续谱以及饱和强度高的优点^[5], 在合适的泵浦条件下, 有望作为高功率的真空紫外可调谐激光介质。

参 考 文 献

- [1] D. L. Matthews, P. L. Hagelstein, M. D. Rosen *et al.*, Demonstration of a soft x-ray amplifier. *Phys. Rev. Lett.*, 1985, **54**(2): 110~113
- [2] S. Suckewer, C. H. Shinner, H. Milchberg *et al.*, Amplification of stimulated soft x-ray emission in a confined plasma column. *Phys. Rev. Lett.*, 1985, **55**(17): 1753~1756
- [3] G. Jamelot, A. Carillon, A. Klisnick *et al.*, Recombination scheme in lithium-like ions for XUV amplification. *Appl. Phys.*, 1990, **B50**: 239~246
- [4] 徐至展, 张正泉, 范品忠等, 类锂离子软 X 射线激光实验研究. *中国激光*, 1989, **16**(7): 385~388
- [5] R. Sauerbrey, H. Langhoff, Excimer ions as possible candidates for VUV and XUV lasers. *IEEE. J. Quant. Electron.*, 1985, **21**(3): 179~181
- [6] N. G. Basov, M. G. Voitik, V. S. Zuev *et al.*, Feasibility of stimulated emission of radiation from ionic heteronuclear molecules. I. Spectroscopy. *Sov. J. Quantum. Electron.*, 1985, **15**(11): 1455~1460
- [7] N. G. Basov, M. G. Voitik, V. S. Zuev *et al.*, Feasibility of stimulated emission of radiation from ionic heteronuclear molecules. II. Kinetics. *Sov. J. Quantum Electron.*, 1985, **15**(11): 1461~1469
- [8] F. Steigerwald, F. Emmert, H. Langhoff *et al.*, Observation of an ionic excimer state in CsF^- . *Opt. Commun.*, 1985, **56**(4): 240~242
- [9] F. Steigerwald, W. Hammer, H. Langhoff, Observation of ionic excimer states in the alkali halides. *J. Chem. Phys.*, 1988, **88**(12): 7376~7379
- [10] S. Kubodera, L. Frey, P. J. Wisoff *et al.*, Emission from ionic cesium fluoride excimers excited by a laser-produced plasma. *Opt. Lett.*, 1988, **13**(6): 446~448
- [11] P. S. Millar, T. Petersen, G. Warwar *et al.*, Neutral and ionic excimer molecules produced by reactive kinetics in a laser-produced plasma. *Opt. Lett.*, 1989, **14**(3): 171~173
- [12] P. S. Millar, G. Warwar, P. J. Wisoff *et al.*, Electron beam excitation of rare-gas alkali ionic excimers. *Appl. Phys. Lett.*, 1989, **55**(21): 2176~2178
- [13] L. Frey, S. Kubodera, P. J. Wisoff *et al.*, Spectroscopy and kinetics of the ionic cesium fluoride excimer excited by a laser-produced plasma. *J. Opt. Soc. Am.*, 1989, **B6**(8): 1529~1535
- [14] T. T. Yang, V. T. Gyls, D. G. Harris, Fluorescence from RbF ionic excimers excited by laser-produced soft x rays. *J. Opt. Soc. Am.*, 1989, **B6**(8): 1536~1539
- [15] Q. Wang, C. Zhou, Z. Ma, VUV radiation and kinetics of krypton fluoride ionic excimer. *Appl. Phys. B.*, 1995, **B61**: 301~304
- [16] Cs. Toth, J. F. Young, R. Sauerbrey, Optical gain in the ionic excimer Cs^{2+}F^- excited by soft x rays from a laser-produced plasma. *Opt. Lett.*, 1993, **18**(24): 2120~2122
- [17] Wang Qi, Liu Xuelong, Men Zhuowu *et al.*, Observation of laser Oscillation in ionic excimer $[\text{Ar}^{2+}\text{Ar}]^{2+}$ pumped by relativistic electron beam [REB]. *CLEO'94*, Anaheim U. S. A. May, 1994
- [18] R. D. Cowan, *Theory of Atomic structure and Spectroscopy*, University of California press, 1981
- [19] 王 骐, 姚 勇, 周 赤等, 稀有气体卤化物离子准分子 XUV 跃迁参数计算. *强激光与粒子束*, 1992, **4**(3): 397~404
- [20] Zhou Chi, Wang Qi, Li Sining *et al.*, X-ray from laser produced plasma as an excitation source in spectroscopy study. *J. Harbin Institute of Technology*, 1994, **E-1**(2): 71~74
- [21] 王 骐, 张杉杉, 周 赤等, Ar 中抖动现象观察. *光学学报*, 1994, **14**(9): 918~923

Vacuum Ultraviolet Radiation from Argon Fluoride Ionic Excimer

Zhou Chi Wang Qi Li Sining Ma Zuguang

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

(Received 15 June 1995)

Abstract Vacuum ultraviolet radiation from argon fluoride ionic excimer excited by x-ray from laser produced plasma was observed near 125 nm for the first time. The experimental results are coincident with the calculated ones.

Key words ionic excimer, vacuum ultraviolet radiation, laser plasma