

# 相对论电子束激励的离子型准分子 $\text{Kr}^+\text{Cs}$ 和 $\text{Xe}^+\text{Cs}$ 真空紫外发射\*

邢 达 谭石慈

王 骥

(华南师范大学激光生命科学研究所以 广州 510631) (哈尔滨工业大学光电子技术研究所 哈尔滨 150001)

**摘要** 由相对论电子束激发稀有气体和碱金属 Cs 的混合蒸气,观察到来自  $\text{Kr}^+\text{Cs}$  (131 nm) 和  $\text{Xe}^+\text{Cs}$  (159 nm) 离子准分子的真空紫外发射带。实验研究了真空紫外发射的光谱和温度依赖特性。经理论计算和实验的对比,两个发射带被分别标识为  $(\text{KrCs})^+$  和  $(\text{XeCs})^+$  离子准分子的  $2^1\Sigma^+-1^1\Sigma^+$  跃迁。

**关键词** 真空紫外发射,离子准分子,相对论电子束激发

## 1 引 言

稀有气体碱金属离子准分子系统是一种相当可能以准分子型跃迁形式产生真空紫外和极紫外光谱区内激光的高效率介质<sup>[1]</sup>。这种产物已经由离子束激励和激光等离子体产生的软 X 射线抽运而观测到<sup>[2~5]</sup>。

但是对于实用性激光器件,要求有一个较高的抽运速率或上能级反转粒子数密度以及足够的激活体积。高能电子束抽运恰能解决这两个难题。最近我们已经报道了电子束激励的  $(\text{XeRb})^+$  和  $(\text{KrRb})^+$  离子准分子<sup>[6,7]</sup>以及  $\text{Cs}^2+\text{F}^-$  离子准分子<sup>[8]</sup>发射带的实验观察。本文作为发展这种稀有气体-碱金属体系离子准分子激光器的进一步工作,报道由相对论电子束激励的  $(\text{KrCs})^+$  和  $(\text{XeCs})^+$  离子准分子发射带的实验观察。

## 2 实验装置

本研究使用的实验装置类似于文献[6~8]所描述的。电子束由一个改造的短脉冲电子束装置提供,其束流参数是峰值电流为 4.5 kA,束流直径为 2.0 cm,脉冲宽度为 3 ns(FWHM),以及电子能量为 500 keV。此电子束流被轴向外加均匀磁场(1.5 kG,不均匀度小于 2%)约束,穿过钛阳极膜以及一个 15 cm 长的低压氦气池,沿纵向进入一个保持均匀 Cs 蒸气的热池。此热池与低压氦气缓冲池(drifting section)之间使用一个 kapton 膜(CCK 膜)隔开,此膜的强度很高且电子穿透时的能量损失很小。热池总长为 80 cm,其有效区即由冷却体位置限制的均匀蒸气区长为 40 cm。来自热池激活区内的荧光由一个焦长为 10 cm LiF 透镜聚焦后进入一个 0.2

\* 国家自然科学基金和广东省自然科学基金资助项目。

收稿日期: 1998-05-15; 收到修改稿日期: 1998-09-15

m 焦长的真空紫外单色仪(ARC 公司)。在出射狭缝处使用真空紫外荧光转换板把真空紫外光谱转化为可见光谱,荧光板上的光谱图像被一个高质量的光学成像系统成像在光学多道光谱分析仪(Princeton Instruments, Inc.)的 CCD 探测器(IRY-512)像面上。当使用 1200 线/毫米的光栅时,此系统的光谱分辨能力是每道 0.12 nm。在大部分实验中,加在探测器上的取样门脉冲宽度为 500 ns。

实验前,热池经过严格的烘烤和真空除气 48 h,约 15 g 的高纯 Cs(99.99%)被用烘蒸方法送入热池内,经抽真空到  $1.33 \times 10^{-4}$  Pa,充入 Xe 或 Kr,以及 Ar/Xe 和 Ar/Kr 的混合气体。Cs 的蒸气压被控制在 0.15~2.8 kPa 之间。碱金属蒸气的密度根据蒸气压曲线<sup>[9]</sup>和实测温度通过计算得出。

### 3 实验结果和讨论

图 1 (a) 给出一个在电子束激励的 Xe/Cs 混合蒸气中观察到的 VUV 发射光谱。Xe 气体压力为 15 kPa,热池温度为 345℃,此温度对应一个 1.5 kPa 的 Cs 饱和蒸气压。在 159 nm 处,观察到一个宽带的连续发射峰,此发射峰已在较早的实验中被标定为  $(XeCs)^+$  离子准分子的发射<sup>[5,10]</sup>。光谱展现了一个 7 nm 宽的发射峰,其峰值位置与离子束激发实验<sup>[5]</sup>中观察到的光谱位置略有相同。实验中也观察到在 174 nm 区域出现了稀有气体  $Xe_2^*$  准分子的弱辐射带。此  $Xe_2^*$  准分子荧光仅在较高的 Xe 气压和较低的 Cs 蒸气压时才被观察到。对于 Xe 压力低于 15 kPa 和碱金属蒸气压大于 0.5 kPa,  $Xe_2^*$  准分子荧光几乎完全被碱金属蒸气所猝灭。这与在  $(XeRb)^+$  离子准分子实验<sup>[6]</sup>中观察到的结果非常相似。

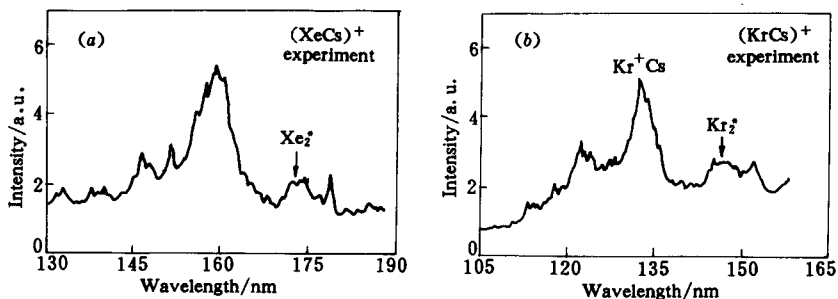


图 1 (a) 电子束激励的 Xe/Cs 混合蒸气中观察到的 VUV 发射光谱。Xe 气体压力为 15 kPa,热池温度为 345℃; (b)  $(KrCs)^+$  离子准分子的 VUV 发射光谱。热池温度为 335℃; Kr 的气压为 15 kPa

Fig. 1 (a) Emission spectrum from the electron-beam-excited Xe/Cs mixture. The cell temperature is 345℃ and the xenon gas pressure is 15 kPa; (b) Emission spectrum from the electron-beam-excited Kr/Cs vapor mixture.

The cell temperature is 335℃ and the krypton gas pressure is 15 kPa

图 1 (b) 中给出在实验中观察到的  $(KrCs)^+$  离子准分子的 VUV 发射光谱, Kr 的气压为 15 kPa, Cs 的蒸气压为 1.2 kPa。光谱展示了在 131 nm 处有一个准连续的发射峰, 这比在离子束激励下<sup>[5]</sup>所观察到的光谱位置稍偏向短波方向。除此之外, 在较低 Cs 蒸气压范围, 观察到一个在 145 nm 处弱的  $Kr_2^*$  准分子发射带。

来自  $(XeCs)^+$  和  $(KrCs)^+$  离子准分子的发射也出现在当 Ar 或 He 惰性气体被掺杂作为缓

冲气体的情况。但是由于惰性气体离子谱线的叠加,光谱变得较为复杂,在这里暂不做讨论。图 2 给出一个在  $\text{Xe}/\text{Cs}$  混合蒸气中观察到的 159 nm 发射带对应温度的变化。在室温下只能观察到中性  $\text{Xe}_2^*$  准分子荧光。当热池温度较低时,离子准分子的发射很弱。当温度达到 300℃ 左右时,159 nm 离子准分子发射有一个明显的增强。除此之外在 135~155 nm 之间还出现了一个弱的连续区。这被认为是同一个发射带的延续,对应较高的振动上能级。

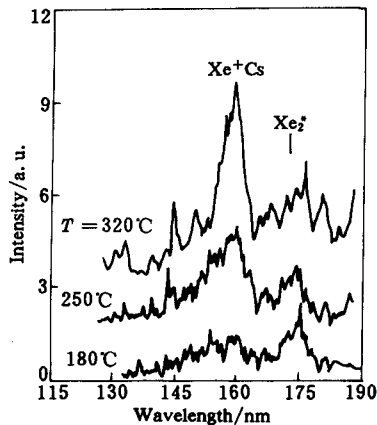


图 2 在  $\text{Xe}/\text{Cs}$  混合蒸气中观察到的 159 nm 发射带对应温度的变化

Fig. 2 Observed temperature dependence of the emission spectrum from the electron-beam-excited  $\text{Xe}/\text{Cs}$  mixture

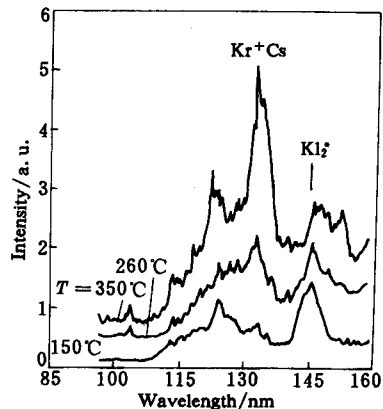


图 3  $\text{Kr}/\text{Cs}$  混合蒸气中观察到的 VUV 发射光谱对应热池温度的变化

Fig. 3 Observed temperature dependence of the emission spectrum from the electron-beam excited  $\text{Kr}/\text{Cs}$  mixture

图 3 给出在  $\text{Kr}/\text{Cs}$  混合蒸气中观察到的 VUV 发射光谱对应热池温度的变化。当温度较低时,离子准分子的发射很弱,而此时  $\text{Kr}_2^*$  准分子荧光很强。当温度达到 350℃ 时,131 nm 离子准分子发射峰有一个明显的增强。而  $\text{Kr}_2^*$  准分子荧光几乎被碱金属蒸气所猝灭。观察到的光谱的峰值位置和形状基本上不随缓冲气体的掺杂以及  $\text{Cs}$  蒸气压的变化而有明显的改变。在较高的温度范围内,光谱上出现一些凹陷,这是由于  $\text{Cs}$  蒸气,主要是  $\text{Cs}_2$  和稀有气体— $\text{Cs}$  异核双原子分子吸收的缘故。

为了给出一个实验与理论比较,我们计算了  $(\text{XeCs})^+$  和  $(\text{KrCs})^+$  离子准分子  $2^1\Sigma^+-1^1\Sigma^+$  跃迁的 Franck-Condon 密度。计算中,使用了最新得到的稀有气体——铷分子离子的 abinitio 势能,这与我们较早的一个理论计算<sup>[10]</sup>比较,其精度要好得多。此计算结果表明,其发射光谱几乎全部是来自于上能级到基态的较长核间距范围的跃迁,而基态这段势能曲线已接近于解离线,所以这样的势能特点将造成一个准连续的发射光谱结构。

图 4 (a) 和 (b) 给出了  $(\text{XeCs})^+$  和  $(\text{KrCs})^+$  离子准分子  $2^1\Sigma^+-1^1\Sigma^+$  的模拟计算光谱,计算方法与我们系列论文<sup>[6~8]</sup>中所采用方法完全相同。计算中考虑了上电子态的 10 个最低的振动能级。理论计算光谱清楚地展现了  $(\text{XeCs})^+$  的跃迁有一个主峰在 163.5 nm,并具有向短波方向扩散的准连续光谱结构。而对  $(\text{KrCs})^+$  离子准分子给出了一个中心在 133.5 nm 的准连续谱带。这些结果与实验观察到的结果非常一致。

比较图 1 与图 4 可以看到,观察到的 159 nm 和 131 nm 发射可以分别标识为  $(\text{XeCs})^+$  和

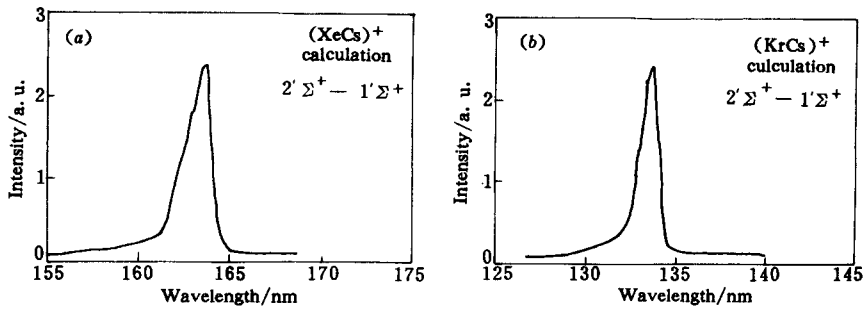


图 4 (XeCs)<sup>+</sup> (a) 和 (KrCs)<sup>+</sup> (b) 离子准分子 2<sup>1</sup>Σ<sup>+</sup>-1<sup>1</sup>Σ<sup>+</sup> 的模拟计算光谱, 计算中考虑了上电子态的 10 个最低振动能级

Fig. 4 The stimulated spectra for the transition of (a) a (XeCs)<sup>+</sup> ionic excimer, and (b) a (KrCs)<sup>+</sup> ionic excimer

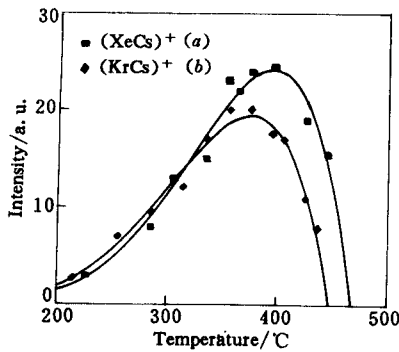


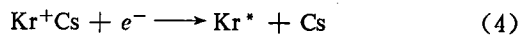
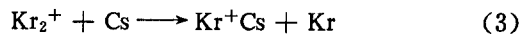
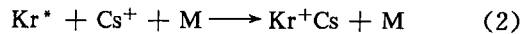
图 5 (XeCs)<sup>+</sup>和 (KrCs)<sup>+</sup>离子准分子发射强度的温度依赖性

Fig. 5 The temperature dependence of the emission spectrum from the electron-beam-excited (a) (XeCs)<sup>+</sup> ionic excimer, and (b) (KrCs)<sup>+</sup> ionic excimer

(KrCs)<sup>+</sup>离子准分子 2<sup>1</sup>Σ<sup>+</sup>-1<sup>1</sup>Σ<sup>+</sup> 跃迁。

图 5 总结了实验中观察到的 (XeCs)<sup>+</sup> 和 (KrCs)<sup>+</sup> 离子准分子发射强度的温度依赖性。(XeCs)<sup>+</sup> 和 (KrCs)<sup>+</sup> 离子准分子荧光强度的最大值分别出现在温度为 400°C 和 380°C 时, 这分别对应于大约 1.5 kPa 和 1.2 kPa 的 Cs 饱和蒸气区。Cs 密度的继续增加引起稀有气体对 Cs 蒸气的辐射吸收的增加, 造成 VUV 荧光强度随温度的继续增加而减小。

以 (KrCs)<sup>+</sup> 离子为例, 其准分子的形成和辐射弛豫的主要动力学过程如下



其中, M 是稀有气体或碱金属原子。在激发的初始阶段, 离子准分子的形成过程 (1) 被认为是反应过程, 其速率常数推测为  $10^{-28} \text{ cm}^6 \text{ s}^{-1}$  [11]。亚稳态激发渠道 (2) 从概念上非常类似于稀有气体-卤化物准分子形成过程中的三体 Harpooning 反应, 对于很多稀有气体-碱金属离子准分子这些反应是放热反应, 并且具有较大的速率常数 [12]。反应过程 (3) 在较低气压下被认为是基本无效的。但是, 在较高气压条件下此过程变为非常有效, 其速率常数推算为  $10^{-9} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$  [11]。这个反应是类似于碱金属原子和卤素之间的“harpoon”反应, 而卤素与碱金属的反应是相当迅速的。准分子激发态的主要损耗是与电子的解离复合过程 (4) 有关, 此过程的速率常数估计为  $10^{-8} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$  [12]。

假设抽运功率密度为  $1 \text{ MW/cm}^3$ , 缓冲气体 He 压力为 3 atm, Kr 气压为 30 kPa, Cs 蒸气压为 0.8 kPa, 这样由一个简化的含时速率方程计算 [10, 13], 可以得到一个最大值上能级粒子数密度为  $4 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ 。如果在 131 nm 处 Cs 蒸气的吸收截面为  $10^{-19} \text{ cm}^2$  [11], 则对于 (KrCs)<sup>+</sup> 离子

准分子 131 nm 发射峰,其增益系数估算为  $2\% \text{cm}^{-1}$ 。这个数值可以进一步通过增加电子束的抽运能量而增加。

### 参 考 文 献

- 1 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
- 2 K. Petkau, J. W. Hammer, G. Herre *et al.*. Vacuum ultraviolet emission spectra of the helium and neon alkali ions in the range between 60~80 nm. *J. Chem. Phys.*, 1991, **94**(12):7769~7774
- 3 P. 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
- 4 F. Steigerwald, H. Langhoff, W. Hammer. Observation of ionic excimer states in the alkali halides. *J. Chem. Phys.*, 1988, **88**(12):7376~7379
- 5 J. Fiedler, L. Frey, F. Steigerwald *et al.*. VUV-transitions in ionic rare-gas alkali molecules. *Z. Phys. D*, 1989, **11**(1):141~145
- 6 D. Xing, K. Ueda, H. Takuma. Vacuum ultraviolet transitions from rare-gas alkali ionic excimers  $(\text{XeRb})^+$  and  $(\text{KrRb})^+$  by electron beam excitation. *Appl. Phys. Lett.*, 1991, **59**(9):1028~1030
- 7 D. Xing, K. Ueda, H. Takuma. Ionic excimers and alkali dimer triplet-state excimer lasers. *Laser Particle Beams*, 1993, **11**(1):3~13
- 8 D. Xing. Electron beam excitation of cesium fluoride ionic excimer. *Chinese J. Lasers* (中国激光), 1996, **A23**(11):1016~1020 (in Chinese)
- 9 A. N. Nesmeyanov. Vapour Pressure of the Elements. Academic. New York; Academic, 1963. 457~468
- 10 D. Xing, Q. Wang, S. C. Tan *et al.*. Bound-free vacuum UV emissions of  $(\text{XeCs})^+$  and  $(\text{KrCs})^+$  ionic excimers by relativistic electron beam excitation. *Appl. Phys. Lett.*, 1997, **71**(18):2584~2586
- 11 N. G. Basov, M. G. Voitik, V. S. Zuev *et al.*. Efficiency of rare-gas-alkali ionic molecules in stimulated emission of ultraviolet and far ultraviolet radiation. *Sov. J. Quantum Electron.*, 1987, **17**(1):106~107
- 12 I. V. Kochetov, A. P. Napartovich, Dennis Lo. Gain dynamics of ionic excimer  $(\text{XeCs})^+$  emission at 160 nm in Ar/Xe/Cs mixtures. *Appl. Phys. Lett.*, 1994, **65**:1888~1890
- 13 D. Xing, K. Ueda, H. Takuma. Vacuum ultraviolet emissions from alkali-halide ionic excimer (CSF) by electron beam excitation. *Jpn. J. Appl. Phys.*, 1992, **31**(Part 1,8):2440~2445

## Vacuum-ultraviolet Emissions from Alkali Ionic Excimer $\text{Kr}^+\text{Cs}$ and $\text{Xe}^+\text{Cs}$ by Relativistic $e^-$ -beam Pumping

Xing Da Tan Shici

(Laser Life Science Institute, South China Normal University, Guangzhou 510631)

Wang Qi

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

**Abstract** A gas mixture of xenon or krypton with a hot vapor of rubidium was excited to obtain a diffuse emission band centered at 159 nm from  $(\text{XeCs})^+$  and at 131 nm from  $(\text{KrCs})^+$  molecular ions. The observed emission bands are assigned to be the  $2^1\Sigma^+ - 1^1\Sigma^+$  transition of  $(\text{XeCs})^+$  and  $(\text{KrCs})^+$ , respectively.

**Key words** vacuum-ultraviolet emissions, ionic excimer,  $e^-$ -beam excitation