

短波长辐射及其应用

聂玉昕 赵理曾

(中国科学院物理研究所)

近年来,许多科学技术领域对远紫外辐射和真空紫外辐射这类短波长光辐射的需求有了较大的增长.而传统的这类光源,如氢灯、氘灯、无窗惰性气体放电管、氩弧及 BRV 源(一种在高真空环境中高 Z 电极间的低电感快脉冲放电光源)等强度较弱,用单色仪分光和检测时的光谱分辨率亦嫌不足.而在可见和近紫外光谱区中,各种脉冲和连续波染料激光器的发展日趋成熟,有商品出售,并已应用于许多领域中.染料激光器的可调谐范围宽、线宽窄、输出波长(或频率)稳定和输出功率大.用准分子激光泵浦的染料激光,还可以在近紫外区调谐.但是,向更短波长区延伸,染料激光的效率显著下降,强的泵浦光还可引起染料分子的光分解,因而靠染料激光器直接获得更短波长的可调谐辐射是困难的.目前,已经发展和正在发展中的短波长辐射源可分为同步辐射、激光和利用非线性光学方法实现染料激光的频率上转换三类,现分述如下,本文拟重点介绍其中的第三类.

一、同步辐射

按照经典电动力学,带电粒子作加速运动时会辐射电磁波.电子同步辐射加速器或电子存储环中的电子在圆形轨道上运动,沿电子轨道的切线方向发出的辐射,就是同步辐射.单个电子辐射的总功率

$$P = \frac{2}{3} \frac{e^2 c}{R^2} \left(\frac{E}{mc^2} \right)^4 \quad (\text{c. g. s.}),$$

式中 c 为光速, e 为电子电荷, m 为电子质量, E 为电子动能, R 为加速器的半径. 同步辐射

的谱分布是连续谱,从红外至真空紫外甚至到 X 光波段,其短波截止波长

$$\lambda_c = \frac{4\pi R}{3} \gamma^{-3},$$

其中 $\gamma = E/mc^2$. 当使用常用单位, R 以米计,电子能量 E 以 GeV 计时有

$$\lambda_c = 5.59 RE^{-3} \text{ \AA}.$$

显然,加速器或存储环中电子动能愈大,短波截止波长就愈短.根据加速器的运行参数,可以计算出同步辐射的谱分布,而且此谱分布与实测值一致.一般的同步辐射加速器,都能给出从红外至真空紫外整个光谱区的辐射,电子能量高一些的,还包含 X 光区的连续谱.

同步辐射主要集中在电子轨道平面内.从轨道上的一点看,辐射集中在它的切线方向上一个很小的立体角内.在加速器圆轨道各处均可沿电子运动的切线方向引出束线,供几套仪器同时使用.在 X 光区,一般用晶体分光仪分光;在真空紫外区,可用光栅单色仪分光.当单色仪扫描时,就可给出可调谐的真空紫外或 X 射线输出了.

同步辐射还具有偏振性质,在电子轨道平面内,同步辐射是线偏振的,其偏振度为 100%.离开轨道平面,才开始椭圆偏振.因为在真空紫外区缺乏合适的偏振器,因而同步辐射的偏振性质在许多应用场合是很有用的.

由于电子在加速器和存储环中是聚群的,因而同步辐射由一系列窄脉宽的光脉冲组成.其脉冲重复率可由变动整个轨道上的电子聚群的数目来调节.最低的脉冲重复率对应于轨道上只有一个电子聚群的情形.典型脉冲间隔值约 $1\mu\text{s}$,脉冲宽度值约 1ns .可以利用同步辐射

的这些时间特性进行时间分辨或寿命的测量。

此外,同步辐射输出相当稳定,加速器的束流强度、电子动能均可在一定的范围内调节,因而它是很好的真空紫外和X射线源,可作为这些光谱区的强度标准,从而得到了广泛的应用。我国正在建造的电子同步辐射加速器和正负电子对撞机的电子存储环均可作为同步辐射源使用。

应当说明,无论电子同步辐射加速器还是存储环,都是比较大型和固定的设备,其建造费用和运行费用都比较高。使用同步辐射时,只能把各种仪器搬到加速器或存储环附近才行。显然,不可能在每个需要这种辐射源的实验室都建造。从这个角度上说,发展其它类型的短波长可调谐辐射源也是十分重要的。关于同步辐射的性质和应用可参阅文献[1]。

二、短波长激光器

最先进入真空紫外区的激光器要算氢分子激光器,它在1100—1600 Å范围的许多谱线上有激光输出^[2]。但其输出功率不够高,未能得到重要的应用。稍后实现了几种准分子激光器的运转,其输出波长位于紫外区和真空紫外区,输出功率很高、效率很高,因而发展极为迅速^[3-4],并在许多领域得到了广泛的应用。由于准分子激光是基于从激发的二原子或三原子聚合物到它们的分解基态的“束缚-自由”跃迁,因而可以在一定的波长范围内调谐。但其调谐范围比较窄、激光谱线的线宽较宽,不适于高分辨率光谱学的研究工作。另外,由于爱因斯坦自发发射系数 A 与频率 ν 的三次方成正比,运转在短波长时处于激光上能级的粒子通过自发发射去激发成为严重的问题,因而为了产生激光,所需的泵浦功率要很高。目前一般采用高功率的电子束或快脉冲气体放电方式泵浦这些短波长的激光器。表1列出各种真空紫外激光器的输出波长。

不久前,美国伊利诺斯大学的 C. K. Rhodes 等人利用准分子激光多光子激发氦,获得了

表1 各种真空紫外激光器的输出波长

激光体系	工作波长 (nm)
H ₂ , HD, D ₂	110 - 161
CO	181 - 197
F ₂	157.5
C IV	154.8, 155.1
Kr IV	175.6, 195.0
ArF*	193
XeF*	173
KrF*	146
ArF*	126

93 nm 的受激发射^[5]。他们将功率为1GW,脉冲宽度为10ps的ArF*准分子激光输出(波长193nm)聚焦在充有100—1000 Torr 氦气的差分室中。氦原子同时吸收四个光子,其内壳层电子跃迁至高激发态上。当这样的氦原子通过受激发射回到较低能态时,就观测到了93nm的受激发射。早期的实验中,从193nm的激发光向93nm的输出光的最大转换效率是10⁻⁴,后来的结果表明这一转换效率可提高1—2个数量级^[6]。他们认为,这种用多光子激发原子内壳层电子的办法,是一种产生软X射线(波长在10nm以内)受激发射的有希望的方法。

三、通过非线性光学方法产生

短波长的相干辐射

目前,常用于产生真空紫外辐射的非线性光学过程有高压氢分子的反斯托克斯受激喇曼散射、反斯托克斯喇曼激光和四波混频。光在非线形光学晶体中的倍频和和频,也是频率上转换的有效途径,但是由于通用的非线性光学晶体在真空紫外区不透明,因而只能用来产生紫外区的可调谐辐射。而在真空紫外区透明的光学晶体,由于非线性系数不高也不合用,因此寻找或人工制造真空紫外区透明而且非线性系数又大的光学晶体,或许是一个应该探索的方向。

利用高压氢分子振动能级的反斯托克斯受激喇曼散射,原则上可以产生波长很短的可调谐辐射。产生1000 Å附近的真空紫外辐射已有报道。国内外已有这种称为“喇曼频移器”的

商品,但其主要用途还是产生 2000 Å 以上的紫外可调谐辐射.优点是装置比较简单,在紫外区的效率较三次谐波产生及四波混频高得多.这种方法的一个比较突出的缺点是缺乏选择性,各阶斯托克斯线和反斯托克斯线同时出现,同一阶数的斯托克斯线比反斯托克斯线强,因而这也是产生红外可调谐辐射的有效方法.阶数低的,强度大;阶数高的,反斯托克斯线上只有很少的功率,因而用来产生真空紫外辐射的效率极低,不便利用.

反斯托克斯喇曼激光(ASRL)是最近几年发展起来的产生相干可调谐真空紫外辐射的新方法.它基于入射光子在激发的亚稳态(初态)原子上的反斯托克斯喇曼散射过程^[7].图1为ASRL过程的原理图.原子在亚稳态上的粒子数反转可以由分子的选择性光分解产生,也可以由气体放电产生.泵浦光射入后引起向一较低能级(或原子基态)的反斯托克斯发射.

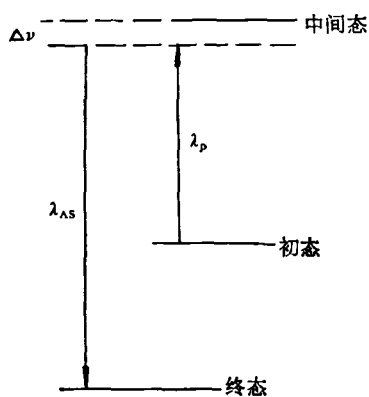


图1 ASRL原理图

λ_p 表示泵浦光, λ_{AS} 表示反斯托克斯喇曼激光

当入射的泵浦光波长接近于使原子从初态通过偶极允许跃迁至一中间能态时,则通过共振的反斯托克斯散射过程使亚稳态和较低能态(终态)联系起来.如果入射激光足够强,则产生在反斯托克斯线波长处的受激发射.入射激光的波长调谐时,输出的反斯托克斯喇曼激光的波长也可以在一定的范围内调谐.这种喇曼过程的截面在三能级近似下可以由下式表示:

$$\sigma_R \propto \frac{f_1 f_2 \nu_R}{\nu_1 \nu_2 (\Delta\nu)^2 \Delta}$$

式中 f_1 与 f_2 为初态及终态至中间态跃迁的振子强度, ν_1, ν_2 为初态及终态至中间态的跃迁频率, ν_R 是反斯托克斯线频率, $\Delta\nu$ 为虚偏调(输入激光频率与初态至中间态跃迁频率的偏离), Δ 是喇曼线宽.由上式可知,在非共振情形($\Delta\nu$ 很大)时, σ_R 变小,若想得到较大的喇曼增益,必须有较强的人射光才行.

Harris 首先从理论上提出了 ASRL 的建议,并从实验上研究了产生真空紫外辐射的方法.他们通过空心阴极放电过程在氦气中产生亚稳态的氦原子(He 1s2s ¹S),其密度可达 10^{14} 原子/cm³.入射染料激光时,就产生了可调谐的真空紫外辐射.入射激光能量为每个脉冲 50mJ 时(入射激光波长在 6000 Å 附近),在 546.6 Å 处的辐射为 4.3×10^7 光子/脉冲.他们利用此光源研究了钾蒸气的真空紫外吸收光谱,观察到了一些新的吸收谱线.

White 则利用分子的选择性光分解产生高密度的亚稳态原子,数密度可达 10^{15} 原子/cm³,在铊、铟、碘、溴几种元素的一些能级上实现了 ASRL.图2是他们实验装置的框图.表2给出他们利用的原子能级、入射激光和产生的 ASRL 的波长值.

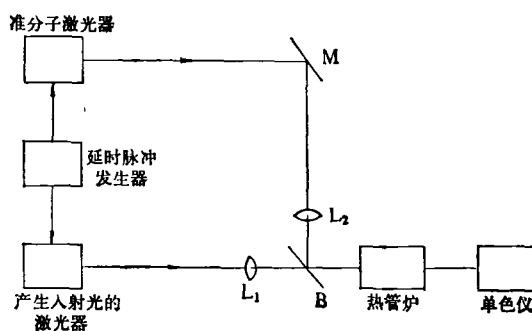


图2 White 等人进行 ASRL 实验的装置框图

应当说明,White 等人的工作中,在使用可调谐人射激光的条件下,产生的 ASRL 也具有一定的调谐范围.近来 White 等人还建议采用另外一些元素的能级来实现 ASRL^[12].可

表2 利用分子的选择性光分解实现 ASRL 的实验结果^[8-11]

元素	初态	终态	入射激光波长(Å)	ASRL 波长(Å)	中间态
Tl	6p ² P _{3/2} ⁰	6p ² P _{1/2} ⁰	5320	3760	7s ² S _{1/2}
Tl	6p ² P _{3/2} ⁰	6p ² P _{1/2} ⁰	3550	2780	
In	5p ² P _{3/2} ⁰	5p ² P _{1/2} ⁰	4510	4100	6s ² S _{1/2}
I	5p ² P _{1/2} ⁰	5p ² P _{3/2} ⁰	2060	1780	6s ² P _{3/2}
Br	4p ² P _{1/2} ⁰	4p ² P _{3/2} ⁰	1575	1490	5s ² P _{3/2}

以预料,今后用此方法产生相干可调谐真空紫外辐射的研究工作一定会相当活跃。

利用四波混频方法产生相干可调谐真空紫外辐射是目前常用的行之有效的办法。这里以一种简并的情形——三次谐波产生为例,说明这种方法的原理。它是三阶的非线性光学效应,由三阶非线性极化率 $\chi^{(3)}$ 描述。从非线性光学理论可以得到三次谐波产生的强度为

$$I_{3\omega} \propto N^2 |\chi_{3\omega}^{(3)}|^2 I_{\omega}^3 f(\Delta k),$$

这里 N 为原子数密度, I_{ω} 为入射激光强度, $f(\Delta k)$ 为 Δk 的函数,由具体实验条件决定, Δk 为位相失配(这里 $\Delta k = k_{3\omega} - k_{\omega}$), $\chi^{(3)}$ 为三阶非线性极化率:

$$\chi_{3\omega}^{(3)} \sim \sum_{a,b,c} \frac{\langle g|\mu|c\rangle \langle c|\mu|b\rangle \langle b|\mu|a\rangle \langle a|\mu|g\rangle}{(\Omega_{cg} - 3\omega)(\Omega_{bg} - 2\omega)(\Omega_{ag} - \omega)},$$

其中 Ω_{ig} 为能级 $|i\rangle$ 的能量除以 \hbar , $\langle i|\mu|j\rangle$ 为态 i 与 j 之间的偶极矩阵元。图3给出简单的四能级系统中三次谐波产生的示意图。

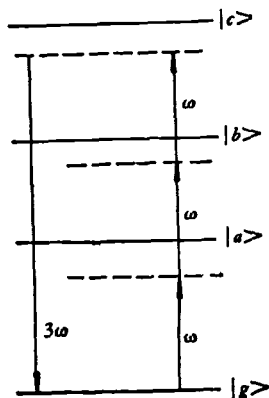


图3 四能级系统三次谐波产生示意图

由上式可知, $\chi^{(3)}$ 与频率有关,因此可以适

当选择频率使 $\chi^{(3)}$ 共振增强。一般采用双光子共振增强 $\chi^{(3)}$, 这样不仅增强 $\chi^{(3)}$, 又可避免三光子或单光子共振时引起的线性吸收。

1974年 Hodgson 等人首先在铯原子蒸气中观察到双光子共振增强效应^[13]。在 2ω 调谐到铯原子的某一能级时,产生的真空紫外辐射增强 10^4 倍。由 $I_{3\omega}$ 的一式可知,为了得到较强的三次谐波输出,除了选择 $\chi^{(3)}$ 大的物质以外,还应使 $f(\Delta k)$ 最大,这就是位相匹配条件,此时非线性物质不同体积元的贡献可以相干地叠加起来。位相匹配条件与具体的实验条件有关,当入射波近似为平面波时, $\Delta k = 0$, 则 $f(\Delta k)$ 最大。在紧聚焦条件下,对三次谐波产生而言,则要求 $\Delta k < 0$ 。为满足位相匹配条件,一般采用两种成分系统,其中一种成分要求有大的 $\chi^{(3)}$, 而第二种成分则用来实现位相匹配。图4给出四波混频产生真空紫外辐射实验装置的示意图。表3给出通过四波混频产生真空紫外辐射的一些实验结果。

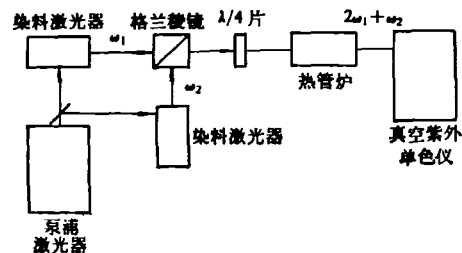


图4 通过四波混频产生真空紫外辐射的实验装置框图

由表3可见,用四波混频方法产生的真空紫外相干可调谐辐射已覆盖 100—200nm 的光谱区域,在一些光谱范围其辐射强度可以比同

表3 四波混频产生真空紫外辐射的若干实验结果

非线性物质	过程	产生的真空紫外辐射	转换效率	备注
Sr	$2\omega_1 + \omega_2$	157.3 — 195.7nm	3×10^{-5}	$2\omega_1$ 双光子共振
Mg	$2\omega_1 + \omega_2$	140 — 160nm 121 — 129nm	2×10^{-3}	$2\omega_1$ 双光子共振
Hg	$2\omega_1 + \omega_2$	117.4 — 122.0nm		$2\omega_1$ 双光子共振
Zn	$2\omega_1 + \omega_2$	106.3 — 140.4nm	$3 \times 10^{-7} - 10^{-8}$	$2\omega_1$ 双光子共振
Xe	$2\omega_1 + \omega_2$	110 — 130nm	$10^{-5} - 10^{-6}$	无共振
	$2\omega_1 - \omega_2$	185 — 207nm		
	$2\omega_1 - \omega_{IR}$	159.5 — 186.6nm		
	$2\omega_1 - \omega_2$	152 — 200nm		
	$2\omega_1 - \omega_2$	155 — 220nm		
Ar	$3\omega_1$	97.3 — 104.8nm	$10^{-5} - 10^{-6}$	
CO	$3\omega_1$	1150nm 附近可调谐		三光子共振
$\left. \begin{matrix} Ar \\ CO \end{matrix} \right\}$	$3\omega_1$	97 — 102nm		在超声分子束中

步辐射在该区域的强度大几个数量级，是可供使用的可调谐光源。上述实验大部是在带有窗口的热管炉或气体室中进行的。当向更短的波长扩展时，首先受到窗口吸收的限制(氟化锂在104nm开始强烈吸收，其它材料的吸收限波长更长些)。一般地说，气体室窗口或热管炉窗口吸收的问题可由差分泵系统解决。向更短波延伸还遇到非线性物质本身吸收的问题。近来发展了利用超声分子束的新技术^[14]，很好地解决了这两个问题。其方法是使入射激光会聚在分子束装置的喷口附近和分子束作用，整个系统由抽速不大的泵就可保持真空，除掉很小的相互作用区以外，光就不再受到任何吸收了。此外，非线性物质从超声喷口喷出时，得以冷却，有利于提高三次谐波产生的效率。因而这可能是一种产生100nm以下真空紫外辐射的主要方法。美国Bell实验室的科学家利用氦分子束获得了氟化氙准分子激光的七次谐波，其波长为35.5nm，这要算是波长非常短的相干辐射了。

四、可能的应用

染料激光器已经获得了广泛的应用，如果

我们能够染料激光器的可调谐、窄线宽、高功率、短脉冲等各特点移至真空紫外区，就一定会开辟出更广阔的应用前景。

从光谱学角度上看，它是一种理想的光源。许多原子(包括内壳层跃迁)和分子在真空紫外区有吸收线和吸收带，利用这种光源，可以进行高分辨率光谱，特别是高激发态的原子和分子光谱研究。传统的光谱学方法一般只能研究和原子基态宇称不同的能级。有了真空紫外可调谐光源，可以先把原子激发到和基态宇称不同的能级，再用一束普通的染料激光，就能把原子激发到与基态宇称相同的原子能级上，特别是一些这种宇称的高激发态和自电离态能级上，从而得到原子能级结构的更多知识。对于分子来说，则可以给出高电子激发态能级的振动-转动结构和相互作用。如果使用微微秒的光源，还可以研究高激发态能级的弛豫特性^[15]。

使用相干的真空紫外辐射进行全息照相，显然可以提高分辨率，这对于提高用全息图记录信息的密度和效率极为有利，在这个方向上的探索已经开始。

测量固体的反射和吸收光谱，通过Kramers-Kronig关系可以得到固体的能级结构与能态密度的信息^[16]，其中真空紫外区的测量占有重

要的地位。研究物质表面的光电子谱仪，在真空紫外区通常用氩灯的 584 Å 和 304 Å 两条谱线，如果用可调谐的真空紫外辐射作为光源，测量光电子的角分布和能谱，一定能给出固体表面能谱和结构的更多信息^[17]。

在核聚变等离子体物理研究中，需要有氢(或氘)的 L_α 线(1216 Å)处强辐射源进行等离子体诊断。用非线性光学方法产生 1216 Å 处相干辐射的研究已有报道^[18]。

在光化学领域，特别是合成一些具有特殊性能的新型材料方面，可调谐的真空紫外辐射可能成为重要的手段^[19]。

总的说来，同步辐射源的利用正在迅速扩展。以非线性光学方法获得真空紫外可调谐相干辐射的研究也很活跃，但是尚在光源本身的开发阶段，人们正在探索非线性物质、频率上转换的方法和提高转换效率的途径，扩展可调谐的波段范围。虽然已有应用于光谱学光化学研究的例子，但是对这种光源的利用还属于开始阶段，预计这种光源在光生物学、医学以及许多技术领域也会是大有作为的。

参 考 文 献

[1] Christof Kunz, Synchrotron Radiation, Springer-

Verlag, (1979), 1—20.

- [2] R. Beck et al., Table of Laser Lines in Gases and Vapors, Springer-Verlag, (1982).
- [3] 黄锡毅, 物理, 6(1977), 346.
- [4] Ch. K. Rhodes, Excimer Laser, Springer-Verlag, (1979).
- [5] Ch. K. Rhodes, *Phys. Today*, 37, Jan. (1984), s-42.
- [6] BMS, *Phys. Today*, 36, Nov. (1983), 19.
- [7] 张道中, 物理, 13(1984), 379.
- [8] J. C. White and D. Henderson, *IEEE J. Quantum Electron.*, QE-18, (1982), 941.
- [9] J. C. White and D. Henderson, *IEEE J. Quantum Electron.*, QE-20, (1984), 462.
- [10] J. C. White and D. Henderson, *Opt. Lett.*, 7 (1982), 204.
- [11] J. C. White and D. Henderson, *Opt. Lett.*, 8 (1983), 520.
- [12] J. C. White, *Opt. Lett.*, 9 (1984), 38.
- [13] R. T. Hodgson et al., *Phys. Rev. Lett.*, 32(1974), 343.
- [14] A. H. Kung, *Opt. Lett.*, 9(1984), 24.
- [15] J. R. Banic et al., *Opt. Lett.*, 6 (1981) 461.
- [16] Nicole Damany et al., Some Aspect of Vacuum Ultraviolet Radiation Physics, Part I, Pergamon Press, (1974).
- [17] H. Ibach, Electron Spectroscopy for Surface Analysis Springer-Verlag, (1977).
- [18] Hans J. Langer, IPP-185, Jan., (1981).
- [19] J. W. Hopburn et al., *J. Chem. Phys.*, 74 (1981), 6226.

(上接第 75 页)

的四维讯息。目前在 τ_2 大于 20min 时，曾观察到受激光子回波。

参 考 文 献

- [1] E. L. Hahn, *Phys. Rev.*, 80 (1950), 580.
- [2] N. A. Kurnit et al., *Phys. Rev. Lett.*, 13 (1964), 567.
- [3] C. K. N. Patel et al., *Phys. Rev. Lett.*, 20(1968), 1087.
- [4] B. Bölger et al., *Opt. Commun.*, 18 (1976), 67.

- [5] G. Brewer et al., *Phys. Rev. Lett.*, 27 (1971), 631.
- [6] T. W. Mossberg et al., *Phys. Rev. A*, 20 (1979), 1976.
- [7] T. J. Chen, Ph. D. Thesis, Columbia University, New York, (1983).
- [8] R. Kachru et al., *Phys. Rev. A*, 21 (1980), 1124.
- [9] R. Kachru et al., *Phys. Rev. Lett.*, 47 (1981), 902.
- [10] P. B. Berman et al., *Phys. Rev. A*, 25 (1982), 2550.
- [11] Y. C. Chen et al., *Phys. Rev. B*, 21 (1980), 40.