

## 光电流光谱测量 CO<sub>2</sub> 激光动力学参数

归振兴 张顺怡 沈桂荣 王润文

(中国科学院上海光机所)

**提要:** 分析了 CO<sub>2</sub>-N<sub>2</sub>-He 激光介质中调制 CO<sub>2</sub> 激光的光电压波形, 其幅度除正比于 CO<sub>2</sub>(00<sup>0</sup>1) 能级粒子数的变化量外, 还与 CO<sub>2</sub> 分子跃迁能级的热弛豫速率有关。测量得到的光电压与增益、光强、动态阻抗和温度的关系可用类似于 CO 分子光电流的解析式来表示。

### Measurement of some CO<sub>2</sub> laser dynamic parameters by opto-galvanic spectroscopy

Gui Zhenxing, Zhang Shunyi, Shen Guirong, Wang Runwen

(Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Academia Sinica, Shanghai)

**Abstract:** Modulating the CO<sub>2</sub> opto-galvanic voltage, signals from CO<sub>2</sub>-N<sub>2</sub>-He laser plasma have been analysed. It is shown that the amplitude of the CO<sub>2</sub> opto-galvanic voltage is related to a change of the population of the CO<sub>2</sub>(00<sup>0</sup>1) level and to the thermal relaxation rates of CO<sub>2</sub> levels. Dependence of opto-galvanic voltage on the gain, intensity, dynamic resistance and temperature measured can be expressed by a solution similar to that OGE of CO molecule.

#### 一、引言

我们曾详细研究过 CO 分子的光电流效应, 并且测量了它的动力学过程参数, 如增益分布、饱和强度、光谱响应率等, 同时给出了相应的解析式<sup>[1]</sup>。这些关系式及测量方法能否推广到 CO<sub>2</sub> 分子的光电流测量? 与 CO 分子不同, CO<sub>2</sub> 分子的光电流效应主要是由热效应导致气体密度起伏, 引起放电阻抗变化产生的。由于 CO<sub>2</sub>(00<sup>0</sup>1) 和 (10<sup>0</sup>0 或 02<sup>0</sup>0) 能级的热弛豫过程对气体产生相反的温度效

应, 至使光电流(电压)出现正和负的波形<sup>[2,3]</sup>。这对通常的定量测量极为不利。本文从 CO<sub>2</sub> 热弛豫机理出发, 分析了 CO<sub>2</sub> 分子的光电压波形的时间特性。选用适当频率的斩波器(本文采用 1 kHz 的调制频率), 使感生光电压幅度  $\Delta V$  仅与发生跃迁的 00<sup>0</sup>1 能级粒子数的扰动量有关, 在上、下能级热弛豫速率基本恒定的情况下, 测量光电压与激光参数的关系就可用类似于 CO 分子的光电压解析式表示, 这将为用光电流效应来测量

收稿日期: 1986 年 4 月 14 日。

收修改稿日期: 1986 年 8 月 15 日。

CO<sub>2</sub> 激光的某些动力学参数提供了方便。

## 二、实验装置

图 1 给出了实验装置示意图。放电管内径  $\phi 10$  mm、放电长度 14 cm 的三层套水冷结构, 两端用硒化锌布氏角窗密封。感生光电压  $\Delta V$  用 XF-10 型选频放大器读数, 光电电压波形用 SR-36 示波器观察, 光强和增益用 SD2490 型激光功率计测量。放电管经真空处理后充入 27 Torr 的 CO<sub>2</sub>、N<sub>2</sub> 和 He(比例为 1:1:7) 的混合气体。放电管冷却水温在 8°C 左右。

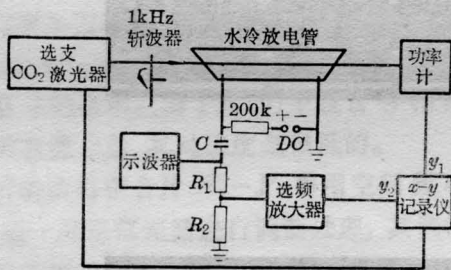


图 1 实验装置示意图

## 三、光电电压波形分析

由电流方程可以得到, 光电压的变化正比于与激光相互作用的局部气体温度的变化, 即  $\Delta V(t) \propto -\Delta T(t)$ 。因此, 研究 CO<sub>2</sub> 光电电压波形可通过分析放电管内气体温度的变化来实现。

不考虑 CO<sub>2</sub> 能级之间细致的能量交换过程, 把 CO<sub>2</sub>(00<sup>0</sup>1) 和 CO<sub>2</sub>(10<sup>0</sup>0 或 02<sup>0</sup>0) 看成分别具有能量为  $Q_{001}$  和  $Q_{100}$  的两个热源, 在稳态放电时, 气体处在某一平衡温度。当 CO<sub>2</sub> 分子发生受激辐射跃迁时, 10<sup>0</sup>0 能级增加能量  $\Delta Q$ , 00<sup>0</sup>1 能级减少  $\Delta Q$ , 10<sup>0</sup>0 能级增加的这部分能量将通过分子间的  $V-T$ 、 $V-V-T$  的碰撞过程对气体加热, 气体升高的温度  $\Delta T_{100}$  正比于  $\Delta N$ 。用  $\tau_{100}^{-1}$  表示 CO<sub>2</sub>(10<sup>0</sup>0) 能级的总热弛豫速率, 则

$$\Delta T_{100}(t) \propto \Delta N (1 - e^{-\frac{t}{\tau_{100}}}) \quad (1)$$

辐射中止时(相当于热源撤消), 气体温度按指数衰减到初始状态:

$$\Delta T'_{100}(t) \propto \Delta N (1 - e^{-\frac{T_1}{\tau_{100}}}) e^{-\frac{t}{\tau_{100}}} \quad (2)$$

式中  $T_1$  是 CO<sub>2</sub> 介质与激光相互作用时间, 亦即斩波器的通光时间。

同理, 00<sup>0</sup>1 能级的弛豫是使气体温度降低。

与激光相互作用的局部气体温度的变化应是 CO<sub>2</sub>(00<sup>0</sup>1) 和 (10<sup>0</sup>0) 能级热弛豫共同作用的结果, 即

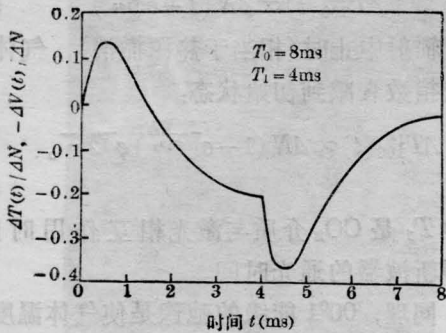
$$T_{gas}(t) = \Delta T_{100}(t) + \Delta T_{001}(t) \quad (3)$$

设通光时间为  $T_1$ 、周期为  $T_0$  的调制光通过 CO<sub>2</sub> 放电介质, 考虑到通截光转变时气体温度的弛豫过程, 可以求得稳定调制下局部气体温度的周期变化规律:

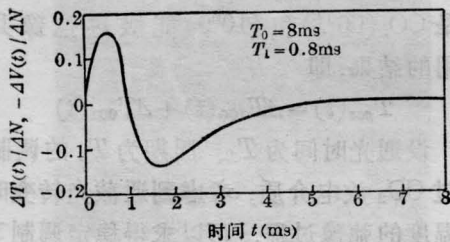
$$\begin{aligned} \Delta T_{gas}(t) / \Delta N = & A \left\{ \left( 1 - e^{-\frac{T_1}{\tau_{100}}} \right) \left[ 1 + \left( 1 + e^{-\frac{T_0}{\tau_{100}}} \right) e^{-\frac{T_0}{\tau_{100}}} \right] e^{-\frac{T_0 - T_1 + t}{\tau_{100}}} \right. \\ & \left. + \left( 1 - e^{-\frac{t}{\tau_{100}}} \right) \right\} - B \left\{ \left( 1 - e^{-\frac{T_1}{\tau_{001}}} \right) \left[ 1 + \left( 1 + e^{-\frac{T_0}{\tau_{001}}} \right) e^{-\frac{T_0}{\tau_{001}}} \right] e^{-\frac{T_0 - T_1 + t}{\tau_{001}}} \right. \\ & \left. + \left( 1 - e^{-\frac{t}{\tau_{001}}} \right) \right\} \\ \Delta T'_{gas}(t) / \Delta N = & A e^{-\frac{t - T_1}{\tau_{100}}} \left( 1 - e^{-\frac{T_1}{\tau_{100}}} \right) \left\{ 1 + \left[ 1 + \left( 1 + e^{-\frac{T_0}{\tau_{100}}} \right) e^{-\frac{T_0}{\tau_{100}}} \right] e^{-\frac{T_0}{\tau_{100}}} \right\} \\ & - B e^{-\frac{t - T_1}{\tau_{001}}} \left( 1 - e^{-\frac{T_1}{\tau_{001}}} \right) \left\{ 1 + \left[ 1 + \left( 1 + e^{-\frac{T_0}{\tau_{001}}} \right) e^{-\frac{T_0}{\tau_{001}}} \right] e^{-\frac{T_0}{\tau_{001}}} \right\} \quad (4) \end{aligned}$$

这里  $\Delta T_{gas}(t)$ 、 $\Delta T'_{gas}(t)$  分别是通光和截光时的温度变化,  $A$  和  $B$  是由激光能级分子集居数决定的正系数。根据实验结果, 取  $A=1$ ,  $B=1.2$ ,  $\tau_{100}=0.5$  ms,  $\tau_{001}=1$  ms, 用(4)式计算了不同  $T_0$  ( $T_0=2T_1$ ) 和任意  $T_1/T_0$  下调制的  $\Delta T_{gas}(t)$ 。结果和拍摄的光电压波形基本一致, 见图 2。

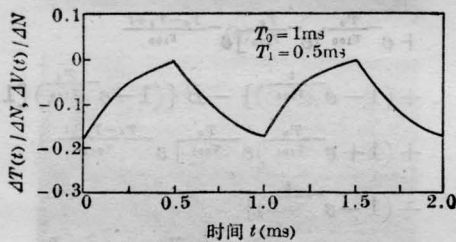
当斩波器的  $T_1 (=1/2T_0) \geq 4\tau_{001}$  时式(4)可简化为:



(a)



(b)



(c)

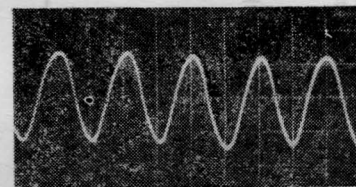
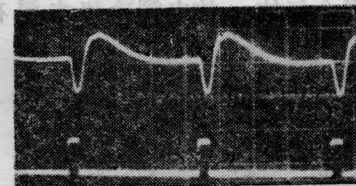
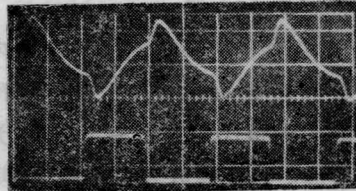


图2 用不同频率和通截光时间比的调制光所感生的  $\text{CO}_2$  光电压波形及其与计算曲线的比较

测量条件:  $\text{CO}_2:\text{N}_2:\text{He} (1:1:7)$ ,  $P=27 \text{ Torr}$ ,  $i_0=6 \text{ mA}$

(a)—(x: 2ms/div y: 0.5V/div)

(b)—(x: 2ms/div y: 0.5V/div)

(c)—(x: 0.5ms/div y: 0.2V/div)

$$\begin{aligned} \Delta T_{\text{gas}}(t)/\Delta N &\approx A(1 - e^{-t/\tau_{100}}) \\ &- B(1 - e^{-t/\tau_{001}}) \end{aligned} \quad (5a)$$

$$\Delta T'_{\text{gas}}(t)/\Delta N = Ae^{-\frac{t-T_1}{\tau_{100}}} - Be^{-\frac{t-T_1}{\tau_{001}}} \quad (5b)$$

根据(5)式和光电压波形就可以求得  $A$ 、 $B$ 、 $\tau_{100}$  和  $\tau_{001}$ 。这对于用光电流效应来研究  $\text{CO}_2$  介质的弛豫过程是方便的。

#### 四、激光参数的测量

从上面的分析可以看出  $\text{CO}_2$  的光电压幅度除了正比于跃迁的粒子数外, 还决定于  $\text{CO}_2$  跃迁能级的热弛豫速率[见公式(4)]。如果用  $\beta_v(\tau_v)$  表示由弛豫时间引起  $\Delta V$  变化的相对量, 则

$$\Delta V \propto \beta_v(\tau_v) \Delta N \quad (6)$$

$\beta_v(\tau_v)$  可利用(4)式作图近似求得。由于  $\text{CO}_2$  混合气体成分、气压、气体温度等因素对  $\text{CO}_2$  能级的弛豫速率有着重要的影响<sup>[6]</sup>，自然， $\beta_v(\tau_v)$  与它们也密切相关。在固定的放电气体中， $\beta_v(\tau_v)$  主要随电流和温度而变化。

与 CO 光电流效应相似，考虑到放电回路及放电伏安特性，以及  $\text{CO}_2$  OGE 特性，对于  $\text{CO}_2$  的光电压可表示为：

$$\Delta V = \frac{C\beta_v(\tau_v)gI}{1+I/I_s} \frac{(dv/di)_0 \dot{i}_0}{1+(dv/di)_0/Z} \quad (7)$$

式中  $C$  是比例常数； $g$  是介质增益； $I, I_s$  分别是入射光强和饱和强度； $(dv/di)_0$  是在电流  $i_0$  处的动态阻抗； $Z$  是回路阻抗。

考虑到温度效应，因  $\Delta N$  基本与  $1/T_{gas}$  成比例，在固定电流下，光电压与温度的关系近似为：

$$\frac{\Delta V}{I} \propto \frac{\beta_v(\tau_v) \cdot g}{T_{gas}} \quad (8)$$

在固定的放电电流下，或电流变化范围不大时， $\beta_v(\tau_v)$  可近似作常数。为此，我们测量了光电压与动力学参数的关系。

### 1. 光电压 $\Delta V$ 与入射光强的关系

图3和图4分别是放电管感生光电压与入射光强的关系和激光腔内调制时光电流与输出光强的关系。在小信号输入光强下，光电压与入射光强呈线性关系，随着入射光的增强，光电压(电流)出现饱和现象。

### 2. 振转跃迁的增益分布和 $\Delta V/I$ 的分布

实验测量了  $\text{CO}_2$  放电介质的  $00^0_1 \rightarrow 10^0_0$  和  $00^0_1 \rightarrow 02^0_0$  带的  $P, R$  支跃迁的增益以及各振转支的光电响应率  $\Delta V/I$ 。图5给出的是  $10P(J)$  振转线组的增益分布测量值以及归一化的光电响应率分布。

$\text{CO}_2 P$  支跃迁的小信号增益系数分布可表示为<sup>[7]</sup>

$$g_0(J) \propto (2J+1) \left[ \frac{N_1}{N_2} e^{-F(J) \frac{hc}{kT}} \right]$$

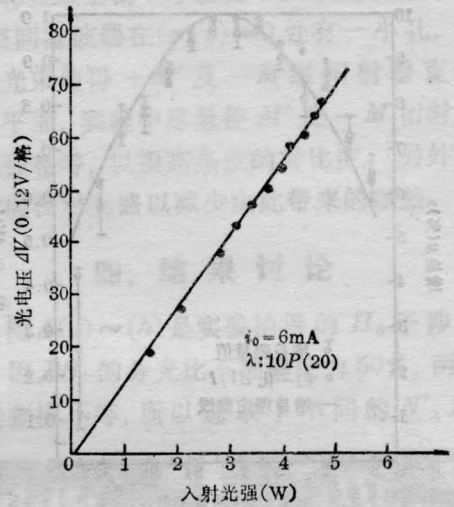


图3 光电压信号与入射光强的关系

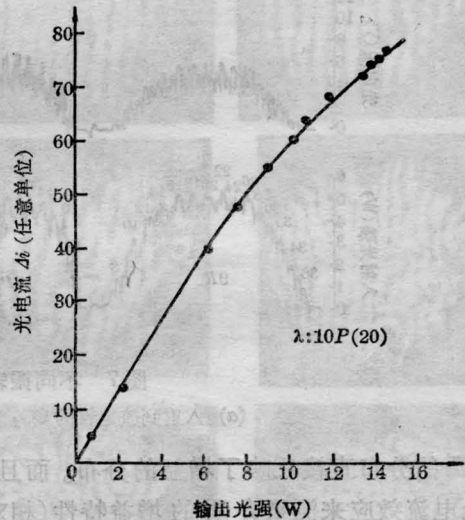


图4 腔内调制光电流与输出光强的关系  
激光器充气压  $\text{CO}_2:\text{N}_2:\text{Xe}:\text{He}(1:2:0.3:7) = 24 \text{ Torr}$

$$\left[ \frac{B_2}{B_1} e^{-F(J) \frac{hc}{kT}} \right] \quad (9)$$

式中

$$F(J) = B_v J(J+1) \quad (10)$$

这里  $J$  是转动量子数； $N_1/N_2$  是能级  $00^0_1, 10^0_0$  的粒子数比，本文取 1.1； $B_1, B_2$  是  $00^0_1$  和  $10^0_0$  的振动常数，分别为  $0.3866 \text{ cm}^{-1}$  和  $0.3897 \text{ cm}^{-1}$ ； $T$  是气体温度，取  $T = 380 \text{ K}$ 。计算得到的增益分布曲线(见图5中实线)和实验测得的结果是符合的。可见

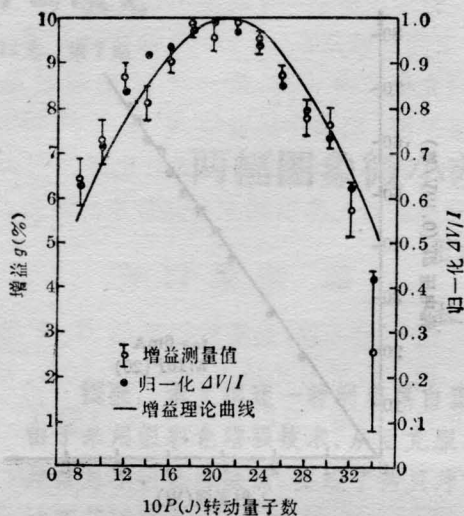


图5 光电响应率与转动支增益的关系

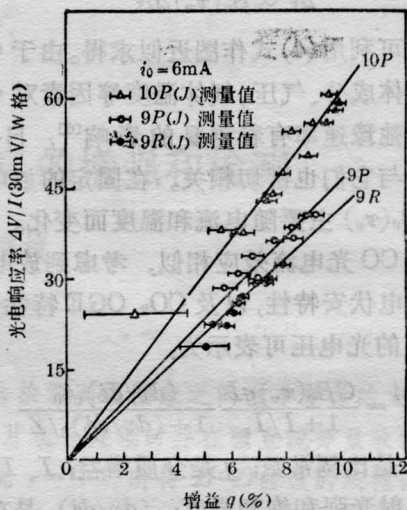


图6 不同振动态的光电响应率与增益的关系

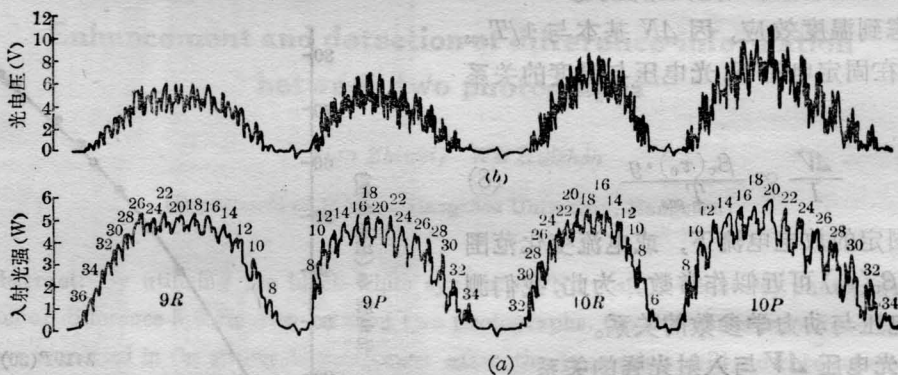


图7 不同振转带的光电流光谱分布

(a) 入射到放电管的  $\text{CO}_2$  激光功率谱 (b) 感应的光电电压谱

$\Delta V/I$  的分布直接反映了增益的分布。而且, 用光电流效应来测量介质的增益特性(相对变化), 还可避免由于激光功率起伏引起的测量误差, 比较简便。

实验发现,  $\text{CO}_2$  同一振动态不同转动支跃迁的单位增益产生的光电响应率基本是常数, 而不同振动态之间跃迁的单位增益产生的光电响应率是不同的, 图6列出了部分测量结果。可以看到, 它们的关系是  $10P > 10R > 9P > 9R$ , 这可能是  $10^0_0$  和  $02^0_0$  能级弛豫速率的微小差异所造成的。因此, 对于不同带的振转跃迁, 即使增益相同, 产生的光电压也会明显不同。所以在入射光强差不多情况下, 产生的光电压却随波长增大而增大, 见图7。

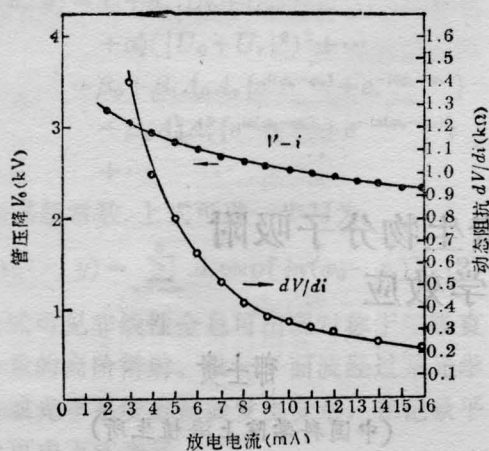
### 3. 光电响应率与放电电流的关系

如果改变放电电流  $i_0$ , 测量出放电伏安曲线, 动态负阻  $dv/di$  和光电响应率  $\Delta V/I$  及  $\beta_v(\tau_v)$ , 便可由下式

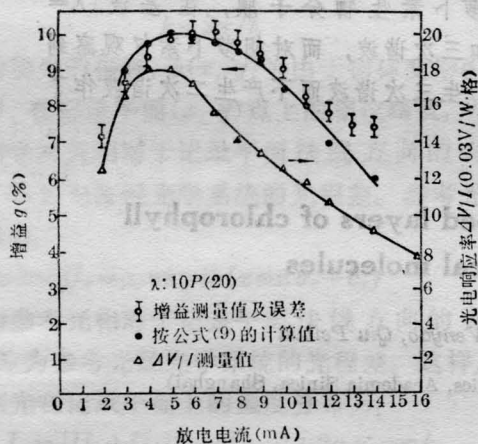
$$g' \propto \frac{(\Delta V/I)[1 + (dv/di)_0/Z]}{\beta_v(\tau_v) i_0 (dv/di)_0} \quad (11)$$

求得增益系数  $g'$  与电流  $i_0$  的关系。

图8给出了实验测得的  $g \sim i$  关系以及根据(11)式计算得到的  $g' \sim i$  关系, 这里把  $\beta_v(\tau_v)$  作常数处理了。两者结果基本一致, 只是随着电流增大, 计算值  $g'$  开始偏离且低于测量值  $g$ 。这是因为随着放电电流增大,  $\tau_{100}^{-1}$  和  $\tau_{001}^{-1}$  增大, 造成  $\beta_v(\tau_v)$  减小, 而计算曲线  $g'$  忽略了  $\beta_v(\tau_v)$  减小的作用。不过, 在电



(a)



(b)

图 8

(a) 放电管  $V-I$  曲线及动态阻抗

(b) 增益与放电电流的关系

流变化范围不大的情况下,  $\beta_v(\tau_v)$  作常量处理还是允许的。

#### 4. 温度对光电响应率的影响

测量了管壁冷却温度对光电响应率及增益的影响。发现随着气体温度变化,  $\Delta V/I$  的测量值与计算曲线  $g/T_{gas}^2$  吻合得比较好, 见图 9。这表明  $\beta_v(\tau_v)$  近似与  $T_{gas}$  成反比关系。文献[8]也有类似测量结果。图中管轴处气体温度是按下式计算的<sup>[9]</sup>:

$$T_{gas}(r) = T_w + \frac{(\dot{v}_0 V) J_0(2.4r/R)}{2.5\pi l k} \quad (12)$$

式中  $T_w$  是壁温,  $R$  是管半径,  $r$  是径向位置,

$l$  是放电长度,  $k$  是热导系数, 取  $1.5 \times 10^{-3}$   $W/cm \cdot ^\circ C$ ,  $\dot{v}_0, V$  可从图 8(a) 查得。

按照激光器的工作条件, 适当变化气压, 或者加入少量氙, 结果基本相似。

## 五、结 论

由连续调制的光电压波形分析可知,  $CO_2$  光电压幅度, 除了与辐射跃迁的粒子数  $\Delta N$  有关外, 还决定于  $CO_2$  跃迁能级的热弛豫速率, 而气体温度、气体成分、气压等对分子弛豫速率有重要的影响, 用  $\beta_v(\tau_v)$  表示由  $CO_2$  跃迁能级的弛豫速率所引起光电压变化的相对量, 则  $CO_2$  光电压可用类似于  $CO$  光

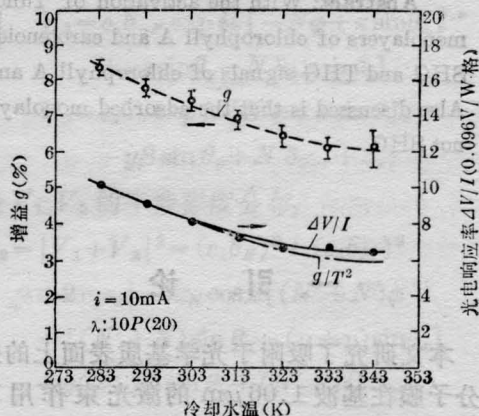
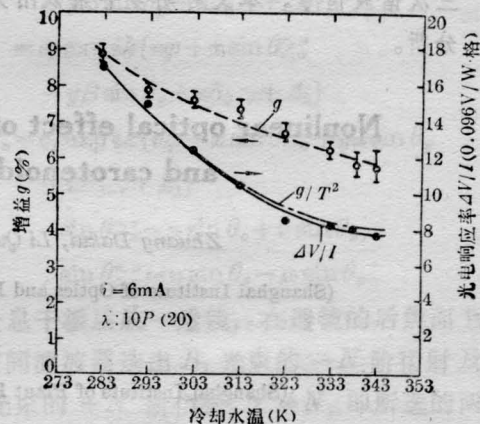


图 9 不同电流下, 光电响应率与增益随冷却温度的变化关系

(下转第 415 页)

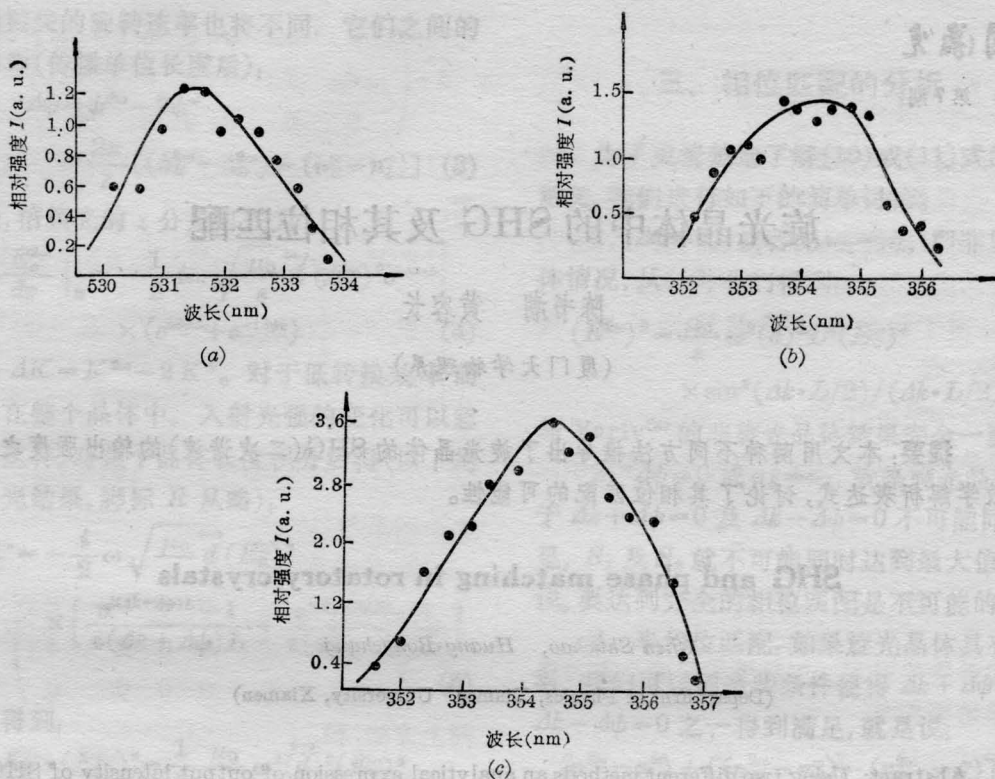


图4 叶绿素A的二次和三次谐波强度以及类胡萝卜素的三次谐波强度

如果将这两种不同结构生物分子分别置于薄的样品盒中(如比色皿),则观测不到它们的二次、三次谐波效应。由于生物分子在溶剂中的无规运动,即使是永久极性分子也将呈各向同性状态。其唯一可能是生物分子与样品池表面相互作用。然而由于液体内部生物分子等作用的影响而大大削弱,因而分子在样品池表面的非线性极化率极小,其非线性谐波效应均消失,从而从反面证明了表

面生物分子膜的非线性增强效应。

### 参 考 文 献

(上接第411页)

电流的解析式来表示,实验结果证明了这一点。这样,就可利用 $\text{CO}_2$ 的光电流效应来探测 $\text{CO}_2$ 的某些动力学参数、放电中 $\text{CO}_2$ 的生成量,以及用来调整谐振腔等。

### 参 考 文 献

[1] 王裕民, 归振兴等;《光学学报》,1984, 4, No 6, 508.  
 [2] J. D. Rigden, G. Moeller; *IEEE J. Quant. Electr.*, 1966, **QE-2**, 365.

[1] F. Zernike, J. E. Midwinter; "Applied Nonlinear Optics", (John Wiley Sons, New York Sydney Toronto London).  
 [2] P. D. Marker, R. W. Terhune; *Phys. Rev (A)*, 1965, **137A**, No. 3, 801.  
 [3] 邱佩华等;《光学学报》,1986, 6, No. 3, 277.  
 [3] Fumiko O. Shimizu et al.; *Japan. J. Appl. Phys.*, 1983, **22**, No. 7, 1144.  
 [4] 赫光生, 雷仕湛;《激光器设计基础》, 第一版, 上海科学出版社, 1979年6月。  
 [5] C. K. N. Patel; *Phys. Rev. Lett.*, 1964, **12**, No. 21, 588.  
 [6] M. Brooks., A. L. S. Smith; *J. Phys. (D)*, 1984, **17**, No. 1, 59.  
 [7] W. L. Mergan et al.; *Phys. Rev (A)*, 1977, **A 16**, No. 3, 1186.