

价共焦腔唯一性的证明。

2. 当稳定球面镜腔具有 p (大于 1) 个光腰时, 该腔与 p 个对称共焦腔等价, 等价的唯一性不再成立。理论上讲, 要求出 p 个等价共焦腔后才能完全确定该腔的本征模式, 这样, 与其使用等价共焦腔方法, 还不如使用其它的等效方法更为妥当。

3. 对于具有虚元件(例如高斯反射率反射镜, 其变换矩阵元素可为复数), 按常规定义的等相位面曲率半径及模斑半径均为复数^[5]。上面的讨论没有包括这种复杂的情况。实际上这种情况下, “等价共焦腔方法”已失去实际意义。

参 考 文 献

- 1 吕百达. 中国激光, 1986; 13(10): 662
- 2 陈侗嵘. 成都电讯工程学院学报, 1983; 4: 10
- 3 卢亚雄. 中国激光, 1988; 15(4): 248
- 4 Yariv. Quantum Electronics, 2 Edition John Wiley & Sons Inc, 1975: 139
- 5 Dwight M Walsh. Appl. Opt., 1986; 25(17): 2947

(收稿日期: 1987年4月15日)

直流辉光放电 HgX ($X = \text{Cl}, \text{Br}, \text{I}$) $B^2\Sigma^+ \rightarrow X^2\Sigma^+$ 发射光谱的研究

徐 淦

(北京航空航天大学)

T. A. King

(英国曼切斯特大学)

Emission spectra of HgX ($X = \text{Cl}, \text{Br}, \text{I}$) $B^2\Sigma^+ \rightarrow X^2\Sigma^+$ transitions in DC glow discharge

Xu Gan

(Beijing Institute of Aeronautics and Astronautics, Beijing)

T. A. King

(Manchester University, UK)

Abstract: It was found experimentally that the resonant energy transfer and Penning process have relatively larger reaction crosssections in $\text{HgBr} + \text{N}_2$ and HgX_2 ($X = \text{Cl}, \text{Br}, \text{I}$) + Ar mixtures respectively. The stimulated cross sections, saturation intensities and oscillation thresholds of these transitions were calculated from experimental data. The possibility for CW operation of $\text{HgX}_2/\text{HgX}(B \rightarrow X)$ lasers is also discussed.

一、引 言

蓝绿色激光由于在水下通讯等方面的应用近年来颇受重视^[1], 溴化汞激光就是其中的一种, 连同氯化汞、碘化汞激光, 统称为 HgX ($X = \text{Cl}, \text{Br}, \text{I}$) 激光, 其波长在可见波段一定范围内可调 (HgCl : 552~559 nm, HgBr : 495~505 nm, HgI : 443~445 nm)。激光跃迁 $B^2\Sigma^+ \rightarrow X^2\Sigma^+$ 的上能态激发可由 HgX_2 蒸气在紫外光或快放电作用下分解实现: $\text{HgX}_2 \rightarrow \text{HgX}_2(b^1\Sigma_u^+) \rightarrow \text{HgX}(B^2\Sigma^+) + X(^2P)$ 。用后一种方式可制成小型、封闭、长寿命器件, 但至今只能得到短脉冲(几十 ns) 输出。本文目的是通过研

究 $\text{HgXB} \rightarrow X$ 跃迁发射光谱, 进一步弄清各种缓冲气体和放电条件下 $\text{HgX}(B^2\Sigma^+)$ 形成机制, 探索提高激光效率和连续工作的途径。

二、实验方法

放电管由普通直管闪光灯和氦氖激光管改制, 电极由不锈钢制成, 以抗卤化物的腐蚀。放电管和样品池分别置于主、辅加热室内。室温下, HgX_2 为白色粉末, 蒸气压极低, 可以方便地对放电管抽真空和配气。所配气体为 He、Ne、Ar、Xe 及 N_2 。配气后对样品加热, 由温度控制 HgX_2 蒸气压, 主加热室温度保持比样品室高 10~20°C, 以避免 HgX_2 在放电

管壁上凝结。HgX₂ 气压变化范围为 0~5 Torr, 缓冲气体压强 5~30 Torr, 放电电流 0~20 mA。最高气压及放电电流受放电管结构及放电稳定性限制。在采用脉冲放电时, 电流脉冲宽度 ≤ 1 μs。放电光谱由单色仪、光电倍增管探测, X-Y 仪记录。

三、实验结果

在低气压(0.5~2 Torr)、小电流(数 mA)条件下, 纯 HgX₂ 蒸气直流辉光放电光谱(图 1)属于 HgXB²Σ⁺ → X²Σ⁺ 跃迁, 其分布特点与光解 HgX 得到的类似, 但总是伴随着 Hg 原子谱线。峰带跃迁发生于 B 态的 v'=0 振动能级与 X 态的高振动能级(对 HgCl, v''=22, 23; HgBr, v''=21, 22; HgI, v''=15~17)之间, 而记录到的最短波长对应于 B 态的高振动能级(HgCl, v'=53; HgBr, v'=65; HgI, v'=35)与 X 态的低振动能级(v''=0, 1)之间。由 Cl→I, 随原子序数增加, 汞原子与卤原子结合能降低, B→X 态间的 Franck-Condon 位移减小, 使谱带变窄, 振动谱带更难于分辨。

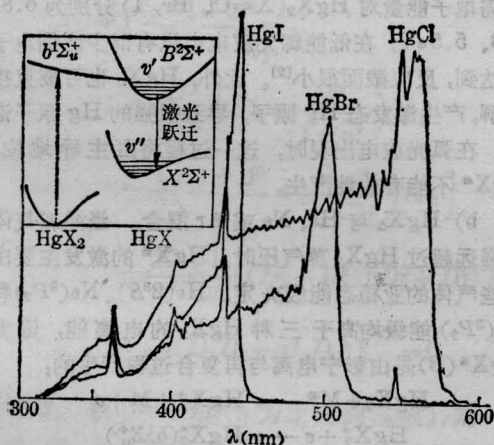


图 1 纯 HgX₂ 蒸气的直流辉光放电光谱。左上角为有关的 HgX₂-HgX 势能曲线相关图

为使 HgX B 态高振动能级去激发, 减小荧光带宽, 并减轻 HgX₂ 分子对 B 态的淬灭, 提高 HgX (B) 产生效率, 我们添加了不同气体重新进行了测量。由图 2 可见, 在加 Ar、Xe 或 N₂ 后, HgBr 光谱显著变窄, 峰带强度增加。特别是加 N₂ 后, 峰值强度比纯 HgBr₂ 中高约 100 倍, 振动带清晰可辨, 说明 N₂ 对 HgBrB 态振动能级有强烈的碰撞驰豫作用, 使更多分子布居在 v'=0 能级上。

HgBr B→X 跃迁峰值强度与 HgBr₂ 蒸气气压及放电电流的关系如图 3 所示。开始呈线性增长, 但很快就达到饱和。最佳蒸气气压值 (~0.4 Torr) 与放

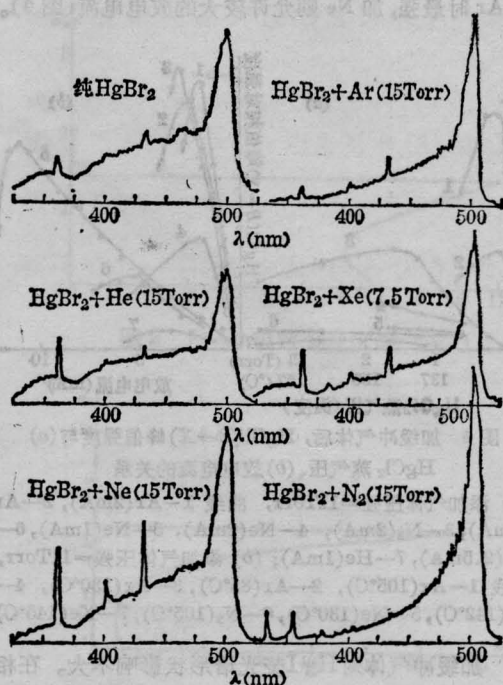


图 2 HgBr₂ 与不同气体混合后的放电光谱

电管参数、放电稳定性有关。电流过大(>5 mA)时, Hg 原子谱线急剧增强, HgX 谱变弱, 放电亦趋不稳, 与纯 HgBr₂ 中类似。采用自加热(利用放电加热)方式可以大大提高电流极限值(图 3(b))。

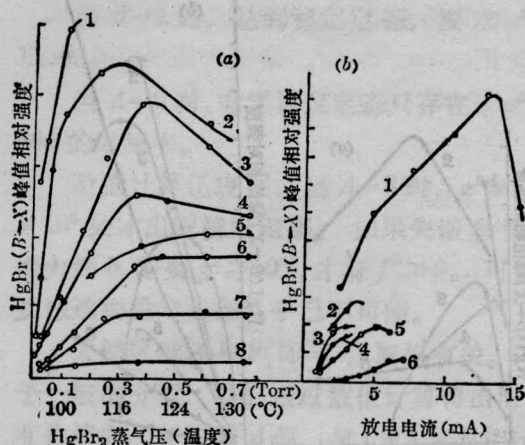


图 3 加缓冲气体后, HgBr(B→X) 跃迁峰值强度与 (a) HgBr₂ 蒸气气压、(b) 放电电流的关系。

(a) 添加气体压强=15 Torr, 曲线 1—N₂(2 mA), 2—Ar(2 mA), 3—N₂(1 mA), 4—Ar(1 mA), 5—Ne(2 mA), 6—Xe(2 mA), 7—He(1 mA), 8—Xe(1 mA); (b) 添加气体压强, 曲线 1—N₂(自加热) 2—N₂(100°C), 3—N₂(90°C), 4—N₂(80°C), 5—Ar(85°C), 6—Ne(90°C)

对 HgCl 荧光光谱来说, 添加气体对带宽的压缩作用仍以 N₂ 最显著。但在同样条件下, 荧光峰值以

加 Ar 时最强, 加 Ne 则允许较大的放电电流(图 4)。

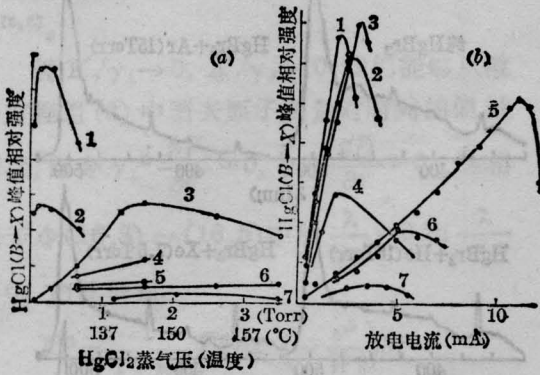


图 4 加缓冲气体后, $\text{HgCl}(B \rightarrow X)$ 峰值强度与(a) HgCl_2 蒸气压、(b) 放电电流的关系

(a) 添加气体压强=11Torr, 曲线 1—Ar(2mA), 2—Ar(1mA), 3— N_2 (2mA), 4—Ne(2mA), 5—Ne(1mA), 6—Xe(2.5mA), 7—He(1mA); (b) 添加气体压强=11Torr, 曲线 1—Ar(105°C), 2—Ar(85°C), 3—Ar(130°C), 4— N_2 (142°C), 5—Ne(130°C), 6— N_2 (105°C), 7—Xe(145°C)

加缓冲气体对 HgI 荧光谱形状影响不大。在相同放电条件下, 则以加 Xe 和 Ar 时峰值强度最大, 不过, 加 Xe 时放电不易稳定。相反, 在纯 HgI_2 中或加 Ne 时, 允许较大的放电电流(图 5)。

概括起来, 我们发现: a) 在辉光放电条件下, 纯

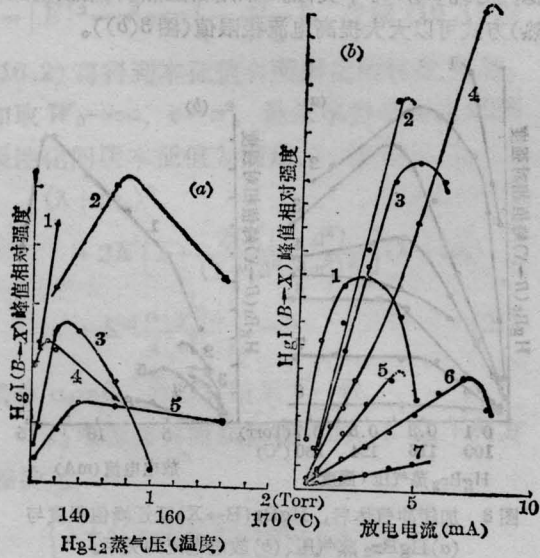


图 5 加缓冲气体后, $\text{HgI}(B \rightarrow X)$ 峰值强度与(a) HgI_2 蒸气压、(b) 放电电流的关系

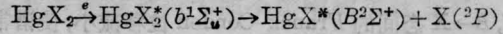
(a) 放电电流=2mA, 添加气体压强=11Torr, 曲线 1—Xe, 2—Ar, 3—Ne, 4— N_2 (7.5Torr), 5—He; (b) 添加气体压强=11Torr, 加 N_2 , 放电不稳, 曲线 1—Xe(130°C), 2—Ar(165°C), 3—Ar(130°C), 4—纯 HgI_2 (165°C), 5—He(95°C), 6—Ne(80°C), 7—Ne(157°C)

HgX_2 蒸气或 HgX_2 与惰性气体及氦气混合均能产生 $\text{HgX } B^2\Sigma^+ \rightarrow X^2\Sigma^+$ 跃迁的荧光光谱; b) 荧光谱中振动带相强度分布与 HgX_2 气压无关, 但强烈受所加气体的影响, 只加 10 Torr 左右的 N_2 、Ar 或 Xe 便能使谱带宽度显著变窄; c) 在相同的温度、气压、电流条件下, HgBr_2 与 N_2 混合对峰带加强最有效。而对所有的三种 HgX_2 , 加 Ar 都能得到较强的荧光, 加 Ne 则能提高放电电流极限; d) HgX 荧光总是伴随着 Hg 原子谱线, 但在辉光放电时, 前者的积分强度远大于后者; e) 辉光放电只有在低气压、小电流下才能实现。超出此范围, 荧光随电流增大而减弱, Hg 原子谱线则迅速增强, 放电不稳, 直至出现弧光放电, 荧光完全消失。

四、讨 论

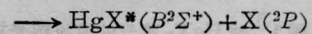
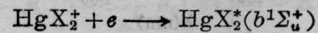
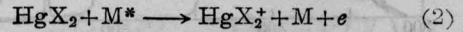
4.1 $\text{HgX}^*(B^2\Sigma^+)$ 产生机制

a) 纯 HgX_2 蒸气中是直接电子碰撞分解:



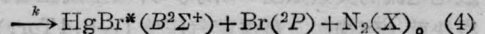
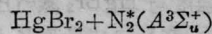
所需电子能量对 HgX_2 (X=Cl, Br, I) 分别为 6.8、6.3、5.5 eV, 在低能辉光放电中只有很少比例电子能达到, 反应截面很小^[2]。此外, HgX_2 也可被直接分解, 产生激发态 Hg 原子, 导致很强的 Hg 原子谱线。在弧光放电出现时, 这一过程将占主导地位, HgX^* 不能有效地产生。

b) HgX_2 与 He、Ne 或 Ar 混合。当添加气体压强远超过 HgX_2 蒸气压时, HgX^* 的激发主要由这些气体的亚稳态能级决定。He(2^3S)、Ne($3P_2$) 和 Ar($3P_2$) 能级均高于三种 HgX_2 的电离能, 因此 $\text{HgX}^*(B)$ 是由彭宁电离与再复合过程产生的:



M^* 代表添加气体原子的亚稳态。Ar($3P_2$) 能级最低(11.7 eV), 与所有三种 HgX_2 的电离能(11.43, 10.6, 10.1 eV) 都十分接近, 反应截面最大。这说明为什么加 Ar 能在所有 HgX_2 中都获得较强的荧光。He($3S$) 与 Ne($3P_2$) 能级远高于 Ar($3P_2$), 很难被放电激发, 因而不能有效地激发 HgX^* , 相应的荧光较弱。

c) HgX_2 与 N_2 、Xe 混合。 $\text{N}_2(4^3\Sigma_u^+)$ 与 $\text{HgBr}_2(b^1\Sigma_u^+)$ 近共振, 因而共振能量转移过程起主要作用:



在用脉冲放电激发时,观察到的余辉约持续4秒,远长于电流脉冲($\leq 1 \mu\text{s}$),证实了以上判断。(4)式有很高反应速率常数($k=1 \times 10^{-10} \text{cm}^3 \text{s}^{-1}$)^[2],所以加 N_2 可大大增强 HgBr 荧光。但在 HgCl_2 、 HgI_2 与 N_2 混合时,直接电子碰撞分解成为主要机制,荧光就比加 Ar 时弱了。

在 HgX_2 与 Xe 混合时,由 $\text{Xe}(^3\text{P}_2)$ 向 $\text{HgBr}^*(B^2\Sigma^+)$ 能量转移速率常数比 N_2 还大^[3],但实验结果除 HgI_2 外,所获荧光都很弱。原因可能是在我们的实验条件下,加 Xe 后放电难于保持稳定所致。

4.2 HgX 激光连续工作的可能性

HgX 激光可视为四能级系统(图1),其受激截面和饱和强度为

$$\sigma_s = \frac{\lambda^4 A}{8\pi c \Delta\lambda} \quad (5)$$

$$I_s = \frac{hc}{\sigma_s \tau_k \lambda} = \frac{hc}{\sigma_s \tau_v \lambda} \left(1 + \sum k_0 \cdot [Q]\right) \quad (6)$$

λ 为激光波长,取为荧光峰值波长; $\Delta\lambda$ 为跃迁带宽,取为峰带宽度; A 为自发辐射系数,可由测得的 $B \rightarrow X$ 荧光寿命 τ_v 乘以峰带积分强度与总积分强度之比求出; τ_k 为上能级的有效寿命; $[Q]$ 、 k_0 分别为第 Q 种分子的浓度和其对 HgXB 态的淬灭速率常数。在所用气压范围,括号中第二项可忽略。

设激活介质有效长度为50cm,腔镜损耗5%,则阈值小信号增益系数 $g_0 \approx 1 \times 10^{-3} \text{cm}^{-1}$,于是
阈值反转密度

$$\Delta N_t = g_0 / \sigma_s \quad (7)$$

阈值泵浦速率

$$R_t = \Delta N_t / \tau_k \quad (8)$$

阈值泵浦功率密度

$$P_t = \frac{R_t hc}{\lambda \eta \eta_0} = \frac{I_s g_0}{\eta \eta_0} \quad (9)$$

η_0 为激光量子效率, η 为 $\text{HgX}_2^*(b^1\Sigma_u)$ 分解为 $\text{HgX}(B^2\Sigma_u^+)$ 的分支比, $\eta \eta_0 \approx 10\%$ 。对 $\text{HgX}_2(1 \text{Torr}) +$

$\text{N}_2(15 \text{Torr})$ 混合,由实验数据和(5)~(9)式求出的上述参量列于表1。

作为一个例子,考虑 $\text{HgBr}(B^2\Sigma^+)$ 在直流辉光放电时的激发速率,在直接电子碰撞下为

$$R = [\text{HgBr}_2] \cdot [e] \cdot \bar{\sigma}_e \cdot \bar{v}_e \propto \text{放电电流}, \quad (10)$$

通过 $\text{N}_2^*(A^2\Sigma_u^+)$ 能量转移时为

$$R' = k \cdot [\text{HgBr}_2] \cdot [\text{N}_2^*(A^2\Sigma_u^+)] \quad (11)$$

$$[\text{N}_2^*(A^2\Sigma_u^+)] = [\text{N}_2] \cdot [e] \cdot \bar{\sigma}'_e \cdot \bar{v}'_e \tau_e \propto \text{放电电流} \quad (12)$$

式中 $[]$ 为各碰撞粒子密度; \bar{v}_e 、 \bar{v}'_e 为平均电子速度, $\bar{\sigma}_e$ 、 $\bar{\sigma}'_e$ 为平均激发截面, $k=1 \times 10^{-10} \text{cm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ (见(4)式), τ_e 为 $\text{N}_2^*(A^2\Sigma_u^+)$ 的有效寿命。本实验中,放电管内径为3mm, $[\text{HgBr}_2]=3.8 \times 10^{16} \text{cm}^{-3}$ (136 $^\circ\text{C}$),放电电流10mA。电子浓度可由平均电子漂移速度求出为 $[e] \approx 9 \times 10^{10} \text{cm}^{-3}$; $\bar{\sigma}_e \leq 10^{-20} \text{cm}^2$ ^[2], $\bar{\sigma}'_e \approx 1 \times 10^{-18} \text{cm}^2$;由放电理论及放电管 E/P 值求出 $\bar{v}_e \approx 7 \times 10^7 \text{cm} \cdot \text{s}^{-1}$, $\bar{v}'_e \approx 1 \times 10^7 \text{cm} \cdot \text{s}^{-1}$, $\tau_e = 77 \text{ns}$ 。由此可求得 $R \approx 2.4 \times 10^{15} \text{cm}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$, $R' \approx 1.5 \times 10^{17} \text{cm}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$ 。虽然利用 N_2 的共振能量转移可使泵浦速率提高60倍,但仍比阈值小三个量级。

由此可见,要达到振荡阈值,必须增大放电电流。即使将腔耗降到1%以下,仍需10A以上电流。改进放电管结构,提高 N_2 压强,可以提高泵浦速率。但在高压、大电流情况下,气体非均加热会引起放电不稳甚至弧光放电,这是实现激光连续工作的主要障碍之一。可能的解决办法是采用自加热放电结构和冷却系统及适当的气体混合(加 Ne),以提高电流极限。由于 $\text{HgX}(X^2\Sigma^+)$ 与 X 原子的有限复合速率引起的“瓶颈”效应^[4],则是另一限制因素。此外,实验结果还表明,加 Ar 应有助于提高混合型(HgCl_2 , HgBr_2 , HgI_2 混合) HgX 激光的效率。采用光学泵浦可从根本上避免放电稳定性问题。最近,文献[5]报道在紫外区350nm附近发现了新的 $\text{HgBr}(X^2\Sigma^+ \rightarrow B^2\Sigma^+)$ 宽吸收带。这使得用长脉冲闪光灯泵浦,实现 HgBr 激光准连续工作成为可能。

表1 $\text{HgX}(B \rightarrow X)$ 激光参数

	HgCl	HgBr	HgI
λ (nm)	555	502	444
$\Delta\lambda$ (nm)	20	12.5	7.5
τ_v (ns)	22.2	23.7	27.3
$1/\Delta$ (ns)	$4\tau_v$	$2\tau_v$	$2\tau_v$
σ_s (cm^2)	7.3×10^{-17}	1.5×10^{-16}	1.3×10^{-16}
I_s ($\text{kW} \cdot \text{cm}^{-2}$)	220	115	125
ΔN_t (cm^{-3})	1.4×10^{13}	6.6×10^{12}	7.6×10^{13}
R_t ($\text{cm}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$)	7×10^{20}	3.3×10^{20}	3.8×10^{20}
P_t ($\text{kW} \cdot \text{cm}^{-3}$)	2.2	1.2	1.3

参 考 文 献

- Schimitschek E J. *Laser Focus*, 1982; (1): 53
- Allison J et al. *Chem. Phys.*, 1978; **35**: 263
- Brown R T et al. *Appl. Phys. Lett.*, 1980; **37**: 1057
- Shay T M et al. *IEEE J. Quant. Electr.*, 1985; **QE-21**(8): 1271
- Greene D P et al. *Appl. Phys. Lett.*, 1986; **48**: 1175

(收稿日期:1986年12月7日)