

非链式脉冲氟化氘激光器光谱特性

潘其坤 谢冀江 邵春雷 王春锐 阮 鹏 邵明振 孟范江 李世明 郭 劲

中国科学院长春光学精密机械与物理研究所激光与物质相互作用国家重点实验室, 吉林 长春 130033

摘要 为了探索氟化氘(DF)激光器级联效应及工作气体参数对激光光谱的影响,对自引发放电非链式脉冲DF激光器进行了光谱特性测试。采用DF激光谱线分析仪和HgCdTe光电探测器测试了 $P_3(7) \rightarrow P_2(8) \rightarrow P_1(9)$ 光谱脉冲波形,发现 $P_1(9)$ 支谱线率先实现振荡输出,脉冲前沿延迟80~100 ns后 $P_2(8)$ 、 $P_3(7)$ 两条谱线依次输出。在不同工作气体配比及总气压条件下测试了DF激光输出谱线条数及各谱线间相对能量,在3.5~4.2 μm 光谱范围内测得了22条激光跃迁谱线,且总气压为8.1 kPa,工作气体(SF_6 和 D_2)气压配比为6:1时,具有量子级联效应的 $P_3(8) \rightarrow P_2(9) \rightarrow P_1(10)$ 光谱串能量占总输出能量的25.9%。结果表明,多谱线DF激光器能级间存在量子级联效应,通过优化工作气体参数可有效提升级联谱线输出时增益提取效率。

关键词 激光器;非链式氟化氘激光器;辐射光谱;脉冲波形;级联效应

中图分类号 TN248.2

文献标识码 A

doi: 10.3788/CJL201542.0215001

Spectral Characteristics of Non-Chain Pulsed Deuterium Fluoride Laser

Pan Qikun Xie Jijang Shao Chunlei Wang Chunrui Ruan Peng Shao Mingzhen
Meng Fanjiang Li Shiming Guo Jin

State Key Laboratory of Laser Interaction with Matter, Changchun Institute of Optics, Fine Mechanics and Physics, Chinese Academy of Sciences, Changchun, Jilin 130033, China

Abstract In order to explore the cascade effect of deuterium fluoride (DF) laser and the influence of working gas parameters on laser spectrum, the spectral characteristics of non-chain DF laser pumped by self-initiated volume discharge are studied. The pulse shapes of cascade lasing on $P_3(7) \rightarrow P_2(8) \rightarrow P_1(9)$ are measured by DF laser spectrum analyzer and HgCdTe photo detector, and it's found that the lasing line of $P_1(9)$ is initiated firstly, and $P_2(8)$ and $P_3(7)$ lines appear 80~100 ns later. The number of laser lines and the relative energies are measured under different ratios and pressures of gas mixture, and 22 laser lines in the range of 3.5~4.2 μm are attained. When the pressure ratio and total pressure of gas mixture (SF_6 and D_2) are 6:1 and 8.1 kPa, 25.9% of emitted energy is contained in the cascade lasing on $P_3(8) \rightarrow P_2(9) \rightarrow P_1(10)$. The results show that there exists cascade effect in multiline DF laser, and the extraction efficiency of laser gain with cascade output can be greatly increased by optimizing the parameters of gas mixture.

Key words lasers; non-chain deuterium fluoride laser; emission spectrum; pulse shape; cascade effect

OCIS codes 140.1550; 300.6360; 140.5965

1 引 言

非链式脉冲氟化氘(DF)激光器输出波段处于大气传输窗口,在3.5~4.2 μm 范围内拥有丰富的激光谱线,对应着不同气体的吸收峰: SO_2 气体对3.9843 μm 附近的 $P_3(9)$ 、 $P_3(10)$ 线具有较强的吸收^[1], H_2S 气体对3.7 μm 附近的 $P_1(9)$ 线具有较强的吸收^[2], N_2O 对谱线 $P_2(10)$ 、 $P_3(7)$ 吸收较强^[3], CH_4 对谱线 $P_1(9)$ 有超强吸收^[4]。因而非链

收稿日期:2014-06-09;收到修改稿日期:2014-07-15

基金项目:科技部国际合作专项基金(2011DFR10320)

作者简介:潘其坤(1985—),男,博士,助理研究员,主要从事高功率中红外脉冲激光器技术方面的研究。

E-mail: panqikun2005@163.com

本文电子版彩色效果请详见中国光学期刊网 www.opticsjournal.net

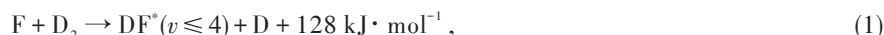
式DF激光器在用于大气污染远程监测的激光雷达方面具有重要的应用前景^[5-7]。

目前报道的关于非链式脉冲DF激光器的工作集中在提升其输出能量、功率、重复频率等性能,采用的技术手段主要包括工作气体参数优化、放电间隙电场均匀性优化、分子筛高效吸附、抽运电路参数优化及工作气体流场均匀性优化等^[8-13]。在非链式DF激光输出光谱方面,1967年Deutsch^[14]采用脉冲放电引发方式测试得到了30条DF激光谱线,但此后的30年里鲜有关于该激光器光谱特性的详细报道。近年来,Panchenko等^[15]研究了谐振腔损耗对DF激光光谱的影响及不同激励条件下DF激光光谱特性,以SF₆-D₂为工作物质,在 $v(4-3)$ 、 $v(3-2)$ 、 $v(2-1)$ 、 $v(1-0)$ 4个振动能级间获得了37条激光谱线,且发现激光能量主要集中在 $v(2-1)$ 、 $v(1-0)$ 两个光谱带上。目前,关于工作气体参数对DF激光光谱的影响的研究仍是空白,研究不同工作气体条件下DF激光输出光谱特性有助于激光输出谱线的选择,提升特定谱线输出时激光能量提取效率。

本文在理论上分析了DF激光器多谱线输出的机理,采用自引发体放电激励方式,以SF₆-D₂为工作物质,对非链式脉冲DF激光器输出谱线进行系统研究。分析了工作气体配比及总气压对激光各分支谱线能量分布的影响,测试了各分支谱线的时间脉冲波形,探讨了谱线间的量子级联效应,为采用光栅选支技术实现单谱线或具有量子级联效应的多谱线输出奠定了基础。

2 DF激光多谱线输出机理

非链式脉冲DF激光器一般采用SF₆和D₂为工作物质,在高压放电时,SF₆分子被高能电子碰撞将裂解出F原子,氧化性极强的F原子将和D₂发生如下化学反应:



式中DF*为激发态DF分子, v 为DF分子振动能级,该反应过程释放的热量可实现DF分子粒子数反转,且大部分能量布局在DF分子的 $v=3$ 能级上。DF激光谱线由DF分子的振转能级间辐射跃迁输出,因而其输出谱线位置由DF分子的上下振动、转动能级能量差决定。DF为双原子分子,其振动能量表达式为^[16]

$$G(v) = \sum_{l=1} Y_{0l}(v+1/2)^l, \quad (2)$$

式中 Y_{0l} 为Dunham系数, l 和 j 为常数,取值由表达式的收敛速率决定,当最终计算项不显著改变求和结果时便可终止求和。同一振动能级上又有若干转动能级,其转动能 $E_{v,j}$ 为振动、转动量子数的双重展开式,即

$$E_{v,j} = \sum_{j=1} \sum_{l=0} Y_{jl}(v+1/2)^l [J(J+1)]^j, \quad (3)$$

式中 J 为转动量子数。DF激光振转跃迁P支谱线可由下式给出:

$$\omega_c(v,J) = G(v+1) - G(v) + E_{v+1,J+1} - E_{v,J}. \quad (4)$$

计算结果以波数(cm^{-1})为单位,激光波长为波数的倒数,DF分子的Dunham系数可查阅化学激光手册。由于化学反应过程如(1)式所示,释放大量的化学能将促使该反应直接生成不同激发态DF分子,且处于同一振动能级上相邻转动能级的激发态DF分子间碰撞弛豫无辐射跃迁过程十分缓慢,即激光谱线间竞争效应不明显,因此非链式脉冲DF激光器将同时输出多条谱线。激光增益损耗比是影响该类型激光器输出谱线条数的主要因素,增益较弱的谱线可能由于损耗较大而无法输出。

非链式脉冲DF激光器是以气体为工作介质的化学激光器,其激光谱线加宽主要为多普勒非均匀加宽和碰撞引起的均匀加宽。多普勒半峰全宽可表示为^[16]

$$\Delta_{\text{DP}} = \left(\frac{2 \times 10^7 N_A k_b \ln 2}{c^2} \right)^{1/2} \omega_c(v,J) \left(\frac{T}{M} \right)^{1/2}, \quad (5)$$

式中 N_A 为阿伏伽德罗常数, k_b 为波尔兹曼常数, M 为DF分子量, T 为绝对温度, c 为光速。

碰撞加宽主要考虑工作气体D₂和SF₆与DF分子间的弹性碰撞,其半峰全宽表达式为

$$\Delta_{\text{LR}} = \frac{1}{4\pi c} \sum_i N_i D_{\text{ai}}^2 \left[2\pi k_b T \left(\frac{1}{m_a} + \frac{1}{m_i} \right) \right]^{1/2}, \quad (6)$$

式中 N_i 为 i 工作气体的粒子数密度, D_{ai} 为碰撞直径, m_a 、 m_i 为碰撞分子质量。

以DF激光中心波长3.8 μm 为例[P₂(8)支谱线,波数为2631.48 cm^{-1}],由(5)、(6)式计算可得DF激光谱线半

峰全宽度分别为 $\Delta_{DP}=4\times 10^{-3}\text{ cm}^{-1}$ 、 $\Delta_{LR}=3.03\times 10^{-3}\text{ cm}^{-1}$ 。由 $\Delta\lambda=\Delta\times\lambda^2$ 可计算出以长度表示的激光谱线半峰全宽,其中 Δ 指 Δ_{DP} 、 Δ_{LP} , λ 为激光波长。计算可得 $\Delta\lambda_{DP}=5.776\times 10^{-3}\text{ nm}$, $\Delta\lambda_{LR}=4.375\times 10^{-3}\text{ nm}$,表明该激光器具有窄线宽特性,因此测量单谱线能量时可以忽略线宽的影响。

3 光谱测试与分析

3.1 实验装置

DF激光光谱测试装置如图1所示,激光器采用自引发体放电非链式脉冲DF激光器实验样机,它采用平板电极,其增益尺寸为 $68\text{ cm}\times 5\text{ cm}\times 5\text{ cm}$,工作介质采用 SF_6 和 D_2 。谐振腔由凹面全反射铜镜和平面 CaF_2 输出镜组成,输出镜反射率为30%。激光输出后由 CaF_2 分束镜(透射率大于90%)分为两支,其中反射光由 HgCdTe 探测器接收后由示波器显示激光脉冲波形,透射光经过缩束系统耦合进入DF激光谱线分析仪显示激光谱线波长。采用可沿分光方向自由移动的自制狭缝能量计代替激光谱线分析仪显示屏,测试了DF激光各条谱线的波长及其相对能量,另外将单点 HgCdTe 探测器放置在DF激光谱线分析仪显示屏处可测试单谱线脉冲波形。

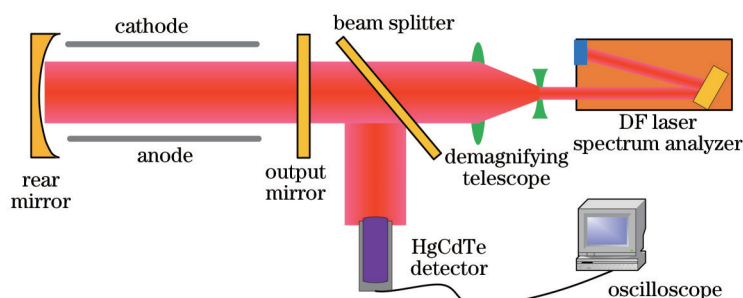


图1 DF激光光谱测试装置示意图

Fig.1 Schematic diagram of DF laser spectral measurement installation

3.2 DF激光光谱及脉冲波形

在充电电压为43 kV,工作气体配比(分压比,下同) $V_{\text{SF}_6}:V_{\text{D}_2}=8:1$,充气总气压为8.1 kPa时,测试了非链式DF激光器输出谱线,结果如图2所示,在 $3.5\sim 4.2\ \mu\text{m}$ 间共获得了22条激光谱线,且能量主要集中在 $3.8\ \mu\text{m}$ 附近。各振动能级上谱线的能量分布 $E(P_1):E(P_2):E(P_3)=4:5:3.5$, v_3 振动能级上的分子由高能级向低能级跃迁的过程中,可逐步经历 $v_3\rightarrow v_2$ 、 $v_2\rightarrow v_1$ 、 $v_1\rightarrow v_0$ 过程,对 P_1 、 P_2 、 P_3 谱线的能量均有贡献,因而理论上DF激光振动能级上谱线能量分布由高到低应逐渐增强,级联效应提升了DF激光能量提取效率。各振动能级上的DF分子可通过不同过程到达基态,而在输出激光百纳秒量级时间范围内,基态的DF分子无法逃逸出增益区。虽然通过级联效应到达 v_1 振动能级上的分子数最多,但 $v_1\rightarrow v_0$ 振动能级间反转粒子数密度并不高,较高的基态DF分子数密度抑制了 P_1 谱线的能量,因此 v_1 振动能级上的谱线能量略低于 v_2 振动能级。另外,各个激射带最强谱线对应的激射腔温也存在差别,但在实验条件下,非链式DF激光振荡的过程中腔温是相同的,因而腔温也将影响各激射带谱线强度分布。

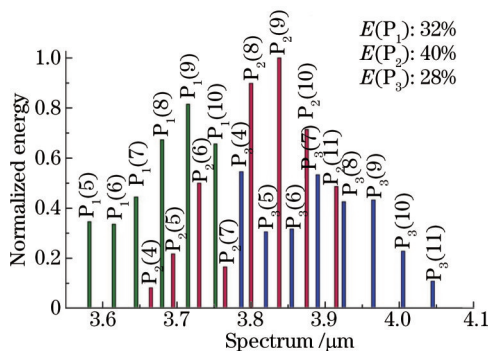


图2 非链式DF激光谱线分布

Fig.2 Laser spectral distribution of non-chain DF laser

存在量子级联效应的 $P_3(8) \rightarrow P_2(9) \rightarrow P_1(10)$ 三支谱线占总输出能量的 20.7%, $P_3(7) \rightarrow P_2(8) \rightarrow P_1(9)$ 三支谱线占总输出能量的 21.2%。采用三个单点室温 HgCdTe 探测器同时测试了 $P_3(7)$ 、 $P_2(8)$ 、 $P_1(9)$ 三条谱线的时间脉冲波形,并由带宽为 500 MHz 的 TDS3052B 型示波器显示,结果如图 3(a)所示。 $P_1(9)$ 支谱线率先振荡输出, $P_2(8)$ 与 $P_1(9)$ 间的延迟时间为 80 ns, $P_3(7)$ 与 $P_2(8)$ 间延迟时间为 20 ns。DF 激光增益区化学反应释放的热量巨大,直接生成的 DF 分子分布在基态的概率接近于零,因而 $v_1 \rightarrow v_0$ 率先完成粒子数反转实现激光输出。随着 v_1 能级上粒子数密度降低, v_2 能级上粒子数密度的积累, $v_2 \rightarrow v_1$ 能级间达到激光辐射阈值,激光迅速形成振荡输出,之后 v_3 能级激光谱线开始振荡输出。 v_2 能级既是 v_1 能级的上能级,又是 v_3 能级的下能级,即向 v_1 能级跃迁过程中消耗 v_2 能级上 DF 分子,而由 v_3 能级的辐射跃迁过程产生 v_2 能级上 DF 分子,因此 v_2 能级上谱线脉宽较宽,且能量较强,该实验结果与 Panchenko 等^[15]的结果一致,证实 DF 激光谱线间存在级联效应。多谱线同时输出脉冲波形如图 3(b)所示,激光脉冲宽度为 200 ns。

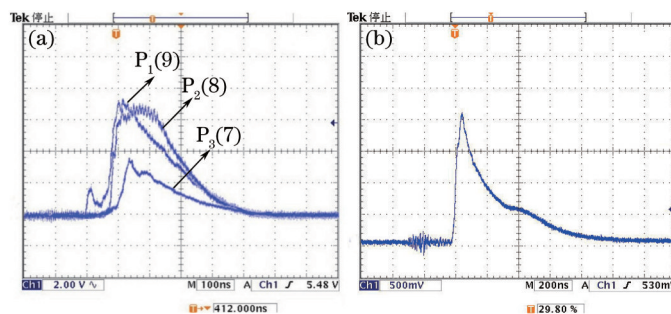


图 3 DF 激光脉冲波形。(a) $P_3(7) \rightarrow P_2(8) \rightarrow P_1(9)$ 级联谱线; (b) 全谱线

Fig.3 Pulsed shape of DF laser. (a) $P_3(7) \rightarrow P_2(8) \rightarrow P_1(9)$ cascade spectra; (b) total spectrum

3.3 气体配比对激光光谱的影响

充电电压为 43 kV,工作气体总气压为 8.1 kPa 时,分别选择 $V_{SF_6}:V_{D_2}$ 为 6:1、8:1、10:1,研究了工作气体配比对激光光谱的影响,图 4 给出了不同气体配比时谱线测试结果。

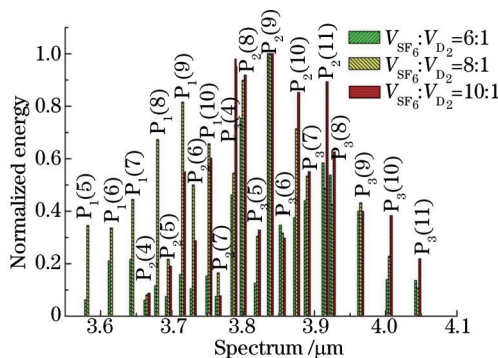


图 4 不同气体配比时 DF 激光输出谱线

Fig.4 Laser spectra of DF laser with different ratios of gas mixture

由图 4 可知,在气体配比为 6:1、8:1 时测得了 22 条谱线,而气体配比为 10:1 时,仅测得了 18 条谱线,此时 $P_1(5) \sim P_1(8)$ 这 4 支谱线被抑制。气体配比为 10:1 时, $v_1 \rightarrow v_0$ 间量子数较低 ($J \leq 8$) 的几个转动能级间的辐射跃迁被抑制。工作气体中 D_2 含量不足将降低激发态 DF 分子生成速率,而此时基态 DF 分子在消激发作用下的生成速率并没有变慢,因而这几个转动能级间由于无法实现粒子数反转而无谱线输出。同时处于较高转动能级 ($J \geq 10$) 基态的 DF 分子生成速率并不迅速,因而在工作气体配比为 10:1 时观察到了 $P_1(9)$ 、 $P_1(10)$ 两支谱线。

在气体配比 6:1、8:1、10:1 时,存在级联效应的谱线串 $P_3(8) \rightarrow P_2(9) \rightarrow P_1(10)$ 的输出能量占总能量的 25.9%、20.4% 和 24.1%; $P_3(7) \rightarrow P_2(8) \rightarrow P_1(9)$ 的输出能量占总能量的 20.7%、22% 和 21.9%。工作气体配比为 10:1 时总的输出谱线条数较少,因而其能量集中度更高。各谱线相对能量受气体配比影响较大,在该波谱范围内两端的激光谱线在不同气体配比时相对能量差值超过 1 倍。

3.4 气体总气压对激光光谱的影响

充电电压为 43 kV,工作气体配比 $V_{\text{SF}_6}:V_{\text{D}_2}=8:1$ 时,分别选择工作气体总气压 P 为 7.1、8.1、10.1 kPa,研究了总气压对激光光谱的影响,图 5 给出了不同总气压时的谱线测试结果。

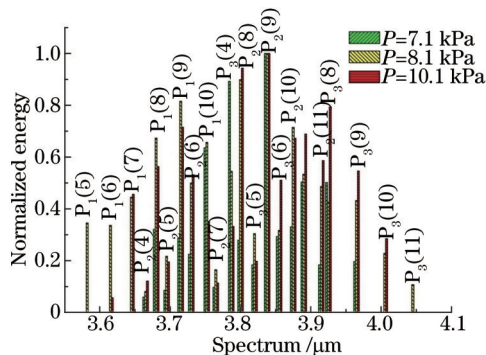


图 5 不同总气压时 DF 激光输出谱线

Fig.5 Laser spectra of DF laser with different pressures of gas mixture

由图 5 可知,在 7.1 kPa 时,测得了 17 条谱线,在 10.1 kPa 时,测得了 20 条谱线,而在 8.1 kPa 时激光输出谱线最多,达到了 22 条。不同气压下输出谱线条数不同可能由于谐振腔内的 Q 值不同所引起,上述测试均是在同样的实验条件下完成,因而激光器损耗系数近似相同。同时,由于激光器存在最佳工作气压,因而不同气压时有效注入能量及腔内存储能量(增益)均不同。在 7.1 kPa 和 10.1 kPa 时,腔的 Q 值偏小,因而部分增益系数较弱的谱线将无法形成振荡输出。通过改变谐振腔内的 Q 值(插入调制器件或采用外腔式以增加空气中传输损耗),可以抑制能量较弱的激光谱线输出。

在上述三种总气压条件下,DF 化学激光器输出能量均集中在 3.8 μm 附近的几条谱线上。但不同的总气压时,同一谱线输出能量的相对值不同,这为选择满足应用需求的输出波长提供了参考。

图 6 为 DF 激光输出谱线照片。经过 30Hz、10s 的累积辐照后,在石墨板上显示出了单谱线能量较高的 6 条烧蚀光斑,它们对应的谱线从左到右依次为 $P_1(8)$ 、 $P_1(9)$ 、 $P_1(10)$ 、 $P_2(8)$ 、 $P_2(9)$ 、 $P_2(10)$ 。其他谱线没有显示的主要原因为单谱线能量太弱而无法在碳板上留下烧蚀痕迹。



图 6 DF 激光输出谱线照片

Fig.6 Spectral photo of DF laser

4 结 论

根据 DF 激光多谱线输出机理计算了激光器输出波长,在自引发非链式脉冲 DF 激光器实验样机上研究了 DF 激光光谱输出特性研究。在三个振动能级上,获得了 22 条激光跃迁谱线,其主要波长集中在 3.8 μm 处,且 $P_3(8) \rightarrow P_2(9) \rightarrow P_1(10)$ 、 $P_3(7) \rightarrow P_2(8) \rightarrow P_1(9)$ 两串光谱能量均占总输出能量的 20% 以上,实验结果证实 DF 激光不同振动能级间谱线存在量子级联效应。工作气体配比及总气压对 DF 激光输出光谱条数及各谱线间相对能量均有显著的影响,通过工作气体参数的选择,可以提升 DF 激光单线输出相对能量。气体参数的优化不能代替光栅选支技术实现单支或少数几支谱线输出,但能够在光栅选支技术的基础上,提升激光增益提取效率,有效提升所需谱线的输出能量。

参 考 文 献

- 1 Altmann J, Pokrowsky P. Sulfur dioxide absorption at DF laser wavelengths[J]. *Applied Optics*, 1980, 19(20): 3449–3452.
- 2 P Pokrowsky. Absorption of H₂S at DF laser wavelengths[J]. *Applied Optics*, 1983, 22(14): 2221–2223.
- 3 T F Deaton, D A Depatie, T W Walker. Absorption coefficient measurements of nitrous oxide and methane at DF laser wavelengths [J]. *Applied Physics Letters*, 1975, 26(6): 300–303.
- 4 D J Spencer, G C Denault, H H Takimoto. Atmospheric gas absorption at DF laser wavelengths[J]. *Applied Optics*, 1974, 13(12): 2855–2868.
- 5 V I Lazarenko, S D Velikanov, I N Pegoe, *et al.*. Analysis of DF laser applicability to SO₂ remote sensing in the atmosphere[C]. *SPIE*, 2001, 4168: 232–235.
- 6 V Y Agroskin, B G Bravy, Y A Chernyshev. Aerosol sounding with a lidar system based on a DF laser[J]. *Appl Phys B*, 2005, 81: 1149–1154.
- 7 B I Vasilev, O M Mannoun. IR differential-absorption lidars for ecological monitoring of the environment[J]. *Quantum Electronics*, 2006, 36(9): 801–820.
- 8 P Ruan, J J Xie, L M Zhang, *et al.*. Computer modeling and experimental study of non-chain pulsed electric-discharge DF laser[J]. *Optics Express*, 2012, 20(7): 28912–28922.
- 9 Pan Qikun, Xie Jijiang, Ruan Peng, *et al.*. Discharge parameters of non-chain pulsed DF laser[J]. *Chinese J Lasers*, 2013, 40(5): 0502009.
潘其坤, 谢冀江, 阮 鹏, 等. 非链式脉冲 DF 激光器放电特性[J]. *中国激光*, 2013, 40(5): 0502009.
- 10 Ruan Peng, Xie Jijiang, Zhang Laiming, *et al.*. Dynamical simulation and experimental study of non-chain pulsed DF laser[J]. *Chinese J Lasers*, 2013, 40(7): 0702002.
阮 鹏, 谢冀江, 张来明, 等. 非链式脉冲氟化氙激光器的动力学模拟和实验研究[J]. *中国激光*, 2013, 40(7): 0702002.
- 11 Tan Gaijuan, Xie Jijiang, Pan Qikun, *et al.*. Design and experimental investigation on unstable resonator for non-chain pulsed DF laser[J]. *Chinese J Lasers*, 2014, 41(1): 0102004.
谭该娟, 谢冀江, 潘其坤, 等. 非链式脉冲 DF 激光器非稳腔设计与实验研究[J]. *中国激光*, 2014, 41(1): 0102004.
- 12 Ruan Peng, Xie Jijiang, Pan Qikun, *et al.*. Dynamical model of non-chain pulsed DF laser[J]. *Acta Physica Sinica*, 2013, 62(9): 094208.
阮 鹏, 谢冀江, 潘其坤, 等. 非链式脉冲 DF 化学激光器反应动力学模型[J]. *物理学报*, 2013, 62(9): 094208.
- 13 Y N Aksenov, V P Borisov, V V Burtsev, *et al.*. A 400-W repetitively pulsed DF laser[J]. *Quantum Electronics*, 2001, 31(4): 290–292.
- 14 T F Deutsch. Molecular laser action in hydrogen and deuterium halides[J]. *Appl Phys Lett*, 1967, 10(8): 234–236.
- 15 A N Panchenko, V M Orlovsky, V F Tarasenko. Spectral characteristics of nonchain HF and DF electric-discharge lasers in efficient excitation modes[J]. *Quantum Electronics*, 2004, 34(4): 320–324.
- 16 R W F Gross, J F Bott. *Handbook of Chemical Lasers*[M]. Beijing: Science Press, 1987.

栏目编辑: 史 敏