

光泵甲酸气体和甲酸-甲醇混合气体亚毫米波激光器

傅恩生 王忠志 石培昇

(中国科学院上海光学精密机械研究所)

提 要

研究了光泵甲酸气体的 393, 418, 432 和 513 μm 的激光发射特性,并用 Si 片扫描法布里-珀罗干涉仪测量了激光波长,精度达到 0.4%。也研究了甲酸-甲醇混合气体的 119, 418, 432 和 513 μm 的多波长激光发射特性,在实验条件下,没有发现甲酸-甲醇的酯化反应对激光输出的影响。

一、引 言

光泵甲酸亚毫米波激光器谱线丰富,波段范围宽广,不仅能以脉冲方式工作,也可以连续波方式运转,因而受到人们的重视^[1~3]。至今在 200~800 μm 的亚毫米波范围发现甲酸有 70 余条激光谱线,其中输出较强的有 393、418、432 和 513 μm 等谱线。本文主要从实验上研究了这些强线的振荡条件、输出功率与泵浦功率以及充气压强的关系,并用扫描法布里-珀罗干涉仪测量了各条线的波长。观测了甲酸和甲醇混合气体的比例及压强对甲酸的 418、413 和 513 μm 以及对甲醇 118.8 μm 输出功率的影响。众所周知,甲酸和甲醇可以发生酯化反应。但是在我们的实验条件下(没有催化剂,气压很低),这种反应进行得相当慢。因而甲酸-甲醇混合气体似乎可能做多波长发射的亚毫米波激光器工作物质。

二、工作原理

甲酸分子吸收 CO_2 某一特定波长的激光后,在上振动态的转动能级之间形成粒子数反转,在激光腔作用下产生亚毫米波激光。

甲酸(HCOOH)分子由五个处于同一平面内的原子组成,分子结构如图 1 所示。它有两个位于分子所在平面内的惯量主轴 a 和 b , 和一个垂直于该平面的惯量主轴 c (图 1 中没有画出)。沿 abc 三个轴的分子转动常数 $A = 77.5 \text{ GHz}$, $B = 12.0 \text{ GHz}$, $C = 10.4 \text{ GHz}$ 所以甲酸分子属于非对称转子。它的非对称参量 $K = \frac{2B - A - C}{A - C} = -0.95^{[4]}$ 。可见它的光谱应该接近长椭球对称转子的光谱。

甲酸分子的永久偶极矩 $\mu = 1.4D$, 沿 a 轴和 b 轴的偶极矩分量平方之比: $(\mu_b/\mu_a)^2 =$

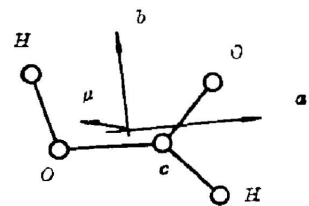


图 1 甲酸分子结构
Fig. 1 The molecular structure of formic acid

收稿日期: 1982年11月18日

0.035。甲酸分子有九个简正振动模。与我们考虑的激光跃迁相关的属于 ν_6 模。甲酸的 $393.6 \mu\text{m}$, $418.6 \mu\text{m}$, $432.6 \mu\text{m}$ 和 $513.0 \mu\text{m}$ 的激光跃迁相应于 ${}^{\circ}R_{0,1}(33_{0,25})$ 、 ${}^{\circ}R_{0,1}(31)$, ${}^{\circ}R_{0,1}(32_{0,32})$ 和 ${}^{\circ}R_{0,1}(25_{5,21})$ ^[4]。其中 α 表示跃迁由 μ_6 决定; R 表示 $\Delta J = +1$ 的跃迁, 下脚标 0 和 1 分别为 ΔK_{-1} 和 ΔK_1 的值, 括号中的值表示下能级的 J_{K_{-1}, K_1} , 其中 J 是角动量子数, K_{-1} 和 K_1 分别为长椭球和偏椭球对称转子近似时角动量在对称轴方向的投影量子数。有关的能级和跃迁示于图 2。以图 2a 为例, 处于基振动态 ($V=0$) 的甲酸分子, 由 $J_{K_{-1}, K_1} = 27_{5, 23}$ 转动能级吸收 CO_2 激光 $9R(28)$ 线, 形成 ${}^{\circ}P_{0,-1}(27_{5, 23})$ 跃迁, 于是激发振动态 ($V=1$) 上的转动能级 $J_{K_{-1}, K_1} = 26_{5, 22}$ 对 $J_{K_{-1}, K_1} = 25_{5, 21}$ 能级建立起粒子数反转, 通过跃迁 ${}^{\circ}R_{0,1}(25_{5, 21})$ 发射 $513 \mu\text{m}$ 的激光。在图 2b, 2c, 2d 中通过类似的过程, 得到其它几个波长的激光。

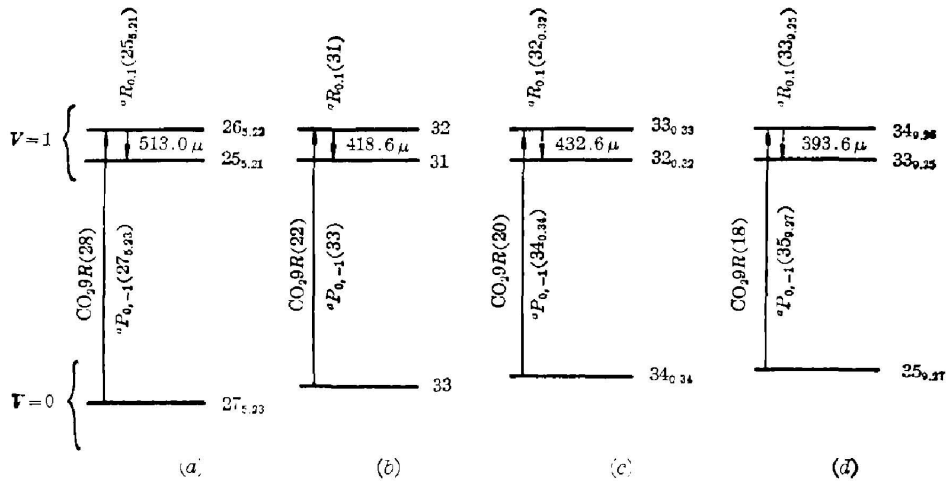


图 2 与甲酸激光有关的能级和跃迁

Fig. 2 Energy levels and transitions of formic acid laser

三、实验结果与讨论

1. 实验装置

光泵甲酸亚毫米波激光器的装置如图 3 所示, 它与我们以前报导过的甲醇激光器相近^[5], 故简要介绍如下: CO_2 激光器放电管电极间距 140 cm , 内径 12 mm , 两端用 ZnSe 布儒斯特窗密封。金属光栅 G (120 L/mm) 和 GaAs 凹面反射镜 ($R=5 \text{ m}$) 构成准共焦共振腔, 腔长 190 cm , 用殷钢架稳定腔长。 GaAs 反射镜安装在压电陶瓷 (P. Z. T) 上, 借直流电压可以微调腔长。 $9R(20)$ 线连续波输出功率典型值是 15 W 。 CO_2 激光经镀金平面反射镜 M_2 、 M_3 和聚焦凹面反射镜 M_4 ($R=500 \text{ mm}$), 通过反射镜 M_5 中心小孔 (直径 3 mm) 注入到开式腔亚毫米波激光器中。 M_5 ($R=3.5 \text{ m}$) 和 M_6 ($R=\infty$, 中心带有直径 3 mm 圆孔) 构成共振腔, 腔长 130 cm 。亚毫米波激光经 M_6 的中心孔上的水晶窗口和 Si 扫描法布里-珀罗干涉仪 (F-P) 用钽酸锂热释电探测器 (D) 接收。同时在示波器和记录仪上观测输出信号。

在典型的甲酸 200 Torr 气压下, 我们用 CO_2 激光器的 $9R(18)$ 、 $9R(20)$ 、 $9R(22)$ 和

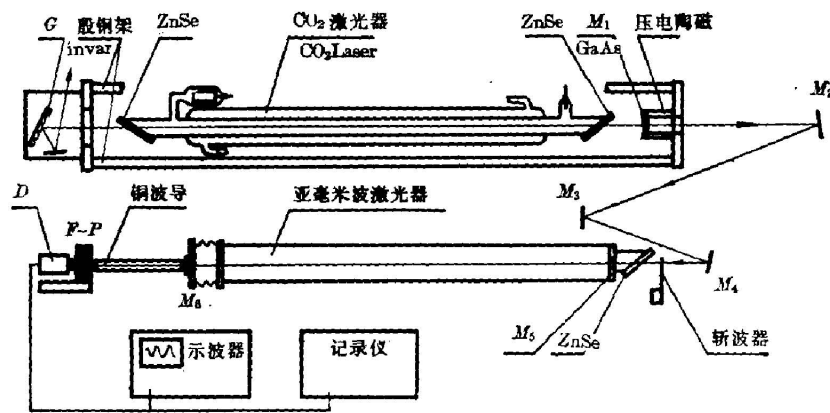


图3 光泵甲酸亚毫米波激光器实验装置

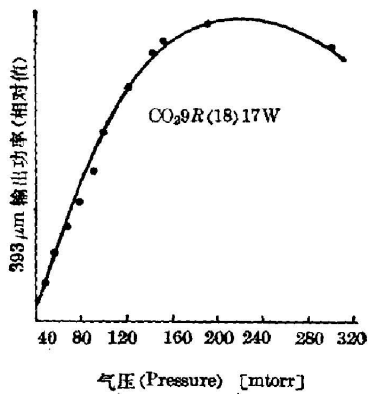
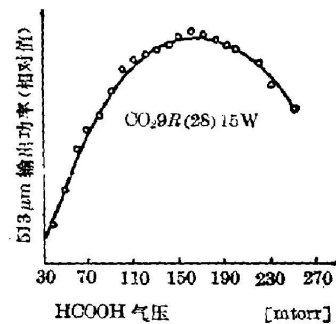
Fig. 3 Experimental setup of the optically pumped submillimeter wave laser in formic acid

9R(28)泵浦分别得到了393.6、432.6、418.6和513.0 μm 的亚毫米波激光。

2. 讨论

(1) 亚毫米波输出功率与充气压强的关系

393.6 μm 亚毫米波激光的输出功率与充气压强的关系如图4所示。最佳气压约200 mTorr。类似的513 μm 的输出功率与气压的关系示于图5。这种现象可以定性的解释如下：当气压低时，相应的粒子数密度小，因而输出功率较小；随着气压增加粒子数密度也增大，因而输出功率也增加，但到一定的气压，上激光能级的转动弛豫由于分子碰撞而加快，下激光能级的消激发速度（与振动弛豫有关）变慢，于是出现饱和；气压进一步加大，由于碰撞加宽，上振动态上的转动能级之间跃迁发射的辐射，被下振动态中转动能级共振吸收，导致激光输出下降。最佳气压表示这些过程的折衷。

图4 HCOOH 393 μm 输出功率与气压的关系Fig. 4 The output power of HCOOH at 393 μm versus the pressure图5 HCOOH 513 μm 输出功率与气压关系Fig. 5 The output power of HCOOH at 513 μm versus the pressure

(2) 亚毫米波激光输出功率与 CO₂ 激光的泵浦功率的关系

图 6 表示 513.0 μm 的输出功率与泵浦功率的关系, 在较低的泵浦功率下, 亚毫米波输出随泵浦功率差不多呈线性关系增加; 到一定程度 (如泵浦功率达到 16 W) 输出有饱和趋势。产生饱和有两个因素: 一是泵浦功率吸收饱和, 另一是亚毫米波发射增益饱和。对于 513 μm 在低气压时, 如文献[3]中估计了 50 mTorr 情况, 亚毫米波发射增益饱和是主要因素; 在本文的情况下 (气压 120 mTorr) 泵浦功率吸收饱和强度为 13.8 W/cm², 而亚毫米波饱和强度为 149 mW/cm², 因此吸收饱和成为主要因素。

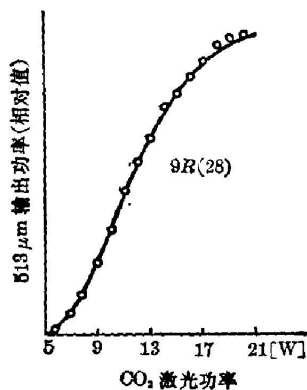


图 6 HCOOH 513 μm 输出功率与 CO₂ 激光功率的关系

Fig. 6 The output power of HCOOH at 513 μm versus the output power of CO₂ laser

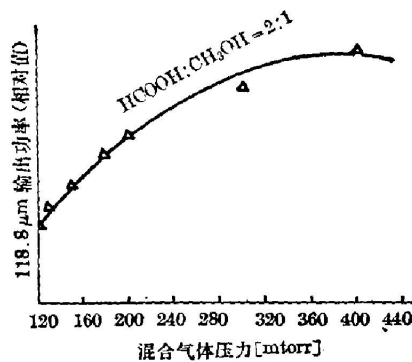


图 7 CH₃OH 118.8 μm. 输出功率与混合气体压力的关系

Fig. 7 The output power of CH₃OH at 118.8 μm versus the vapor pressure of the mixture

(3) 输出波长的测量

本文用 Si 片扫描法布里-珀罗干涉仪测量了甲酸的 513、418、432 μm 的激光波长, 为了核对起见, 重新测量了甲醇 118.8 μm 的波长, 结果列于表 1。

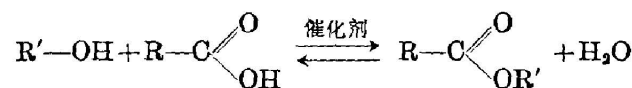
表 1 甲酸亚毫米波激光的波长测量值

Table 1 The measured values for the wavelengths of the formic acid submillimeter wave laser

标准波长, λ, [μm],	513.0	418.6	432.6	118.8(甲醇)
测量值, λ,	515.6	420.6	433.2	118.7
测量误差, Δλ,	±3	±2	±2	±0.5
精度, Δλ/λ,	0.5%	0.4%	0.4%	0.4%

(4) 混合气体最佳气压

我们将甲酸和甲醇以不同比例配制, 研究两种工作物质的激光输出功率与气体成份的关系。通常在催化剂作用下羧酸与醇能以一定速度发生酯化反应



由于激光器工作气压很低 (~100 mTorr), 实验中没有发现酯化反应有明显的影 响。图 7 表

示 $\text{HCOOH}:\text{CH}_3\text{OH}=2:1$ 时甲醇 $118.8\ \mu\text{m}$ 的输出功率与混合气体压强的关系。显然最大输出对应的混合气体总气压比纯 CH_3OH 时的总气压高, 但甲醇组分的分压强与纯甲醇时的最佳气压接近。图 8 表示甲酸的 $418\ \mu\text{m}$ 的输出功率与混合气体 ($\text{HCOOH}:\text{CH}_3\text{OH}=4:3$) 压强的关系。由实验记录曲线看出, 最佳气压约在 $200\ \text{mTorr}$ 附近。我们选择 $\text{HCOOH}:\text{CH}_3\text{OH}=1:1$, 得到 418 、 513 、 432 和 $119\ \mu\text{m}$ 的混合气体多波长输出, 如图 9 所示。激光器运转时间约半小时, 没有发现甲酸或甲醇的激光输出因酯化反应而严重降低。我们预期通过甲酸和甲醇的激光发射强度的变化有可能估计出酯化反应的速度。由于甲酸和甲醇各自都有丰富的谱线, 用它们的混合物作多波长激光工作物质对很多光谱工作是有益的。

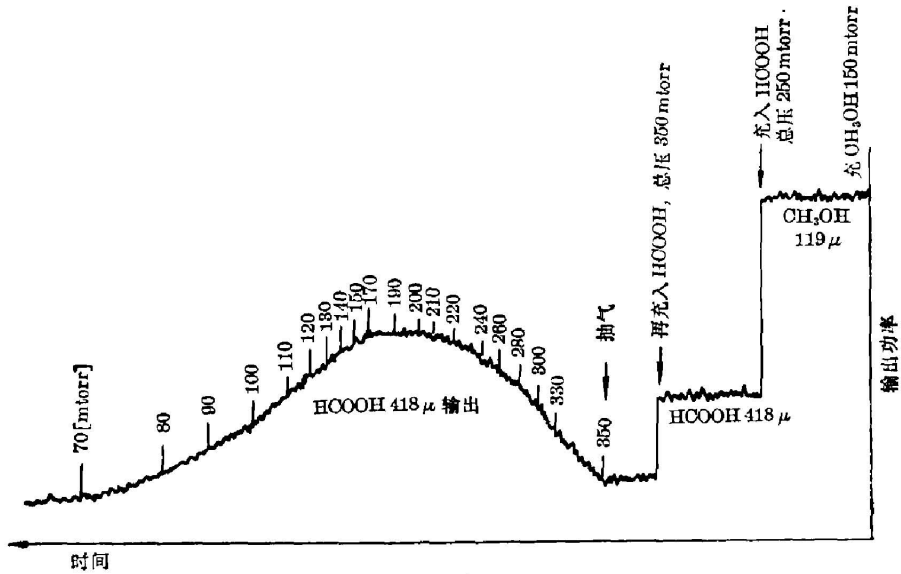


图 8 HCOOH $418\ \mu$ 输出功率与混合气体压力的关系

Fig. 8 The output power of HCOOH at $418\ \mu\text{m}$ versus the vapor pressure of the mixture ($\text{HCOOH}:\text{CH}_3\text{OH}=4:3$)

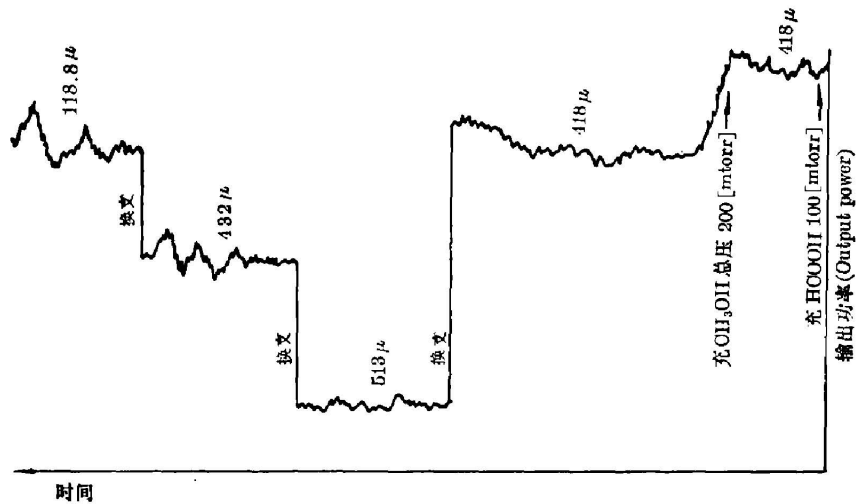


图 9 混合气体的多波长输出

Fig. 9 The output of multiwave length laser of the mixture ($\text{HCOOH}:\text{CH}_3\text{OH}=1:1$)

四、结 束 语

我们通过实验研究了甲酸的四条谱线 393, 418, 432 和 513 μm 的振荡特性。

(1) 当泵浦功率一定时, 各条线都有最佳工作气压, 通常在 120~200 mTorr 之间, 在该气压下激光输出功率最大(见图 5)。

(2) 在通常的气压下(120~200 mTorr), 亚毫米波的输出功率随泵浦功率的增大而增加, 功率饱和现象不显著(图 6)。

(3) 在甲酸和甲醇的混合气体中能获得两种成分的各自的激光振荡, 输出强度比纯气体情况有些下降, 如 119 μm 输出降低 $1.8/7.8 \pm 23\%$ 。在实验条件下(~ 200 mTorr)甲酸和甲醇的酯化反应相当缓慢, 以致对输出功率没有发生显著影响。

参 考 文 献

- [1] T. K. Plant, P. D. Coleman *et al.*; *IEEE J. Q. E.*, 1973, **QE-9**, No. 9 (Sep), 962.
- [2] R. J. Wagner, A. J. Zelano *et al.*; *Opt. Commun.*, 1973, **8**, No. 1 (May), 46.
- [3] L. D. Fesenko, S. F. Dyubko; *Sov. J. Q. E.*, 1976, **6**, No. 7 (Jul), 839.
- [4] O. I. Baskakov, S. F. Dyubko *et al.*; *Sov. J. Q. E.*, 1977, **7**, No. 4 (Apr), 445.
- [5] 傅恩生等;《光学学报》, 1982, **2**, No. 1 (Jan), 9.

Optically pumped submillimeter-wave laser in formic acid vapor and in formic acid-methanol vapor

FU ENSHEN WANG ZHONGZHI AND SHI PEISHENG

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

(Received 13 November 1982)

Abstract

The behavior of the optically pumped laser in formic acid vapor at 393, 418, 432 and 513 μm has been studied and the wavelengths were measured by means of Si scanning Fabry-Perot interferometer. The precision was up to 0.4%. The behavior of multi-wavelengths laser of the formic acid-methanol vapor at 118.8, 418, 432 and 513 μm has been studied. No significant effect of esterificated aciton of formic acid-methanol on output of the laser has been found under the condition of the experiment.