

基态 HF 分子和介质消耗对重复频率脉冲 HF 激光输出的影响

朱峰*, 黄珂, 陶波, 黄超, 李高鹏, 沈炎龙, 栾昆鹏

西北核技术研究所激光与物质相互作用国家重点实验室, 陕西 西安 710024

摘要 研究了氟化氢(HF)分子浓度以及工作介质消耗对激光脉冲能量的影响。受激光器内基态 HF 分子对激光的再吸收以及对激发态分子强弛豫的影响,激光脉冲能量随着激光器内 HF 分子浓度的升高而明显下降, HF 分子浓度每增加 $1 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$, 激光脉冲能量约下降 1.15%。1 个激发态 HF 分子约产生 0.8 个光子, 放电区内 SF_6 气体的分解率约为 1%, 单次放电过程中激光器内所消耗的工作介质较少, 约为气体总量的 $1/(2 \times 10^5)$ 。实验结果表明: HF 分子浓度对激光脉冲能量的影响较大, 介质消耗对激光脉冲能量影响较小; 通过在激光器内加入分子筛, 可以将 HF 浓度控制在 $1.8 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ 的水平。在两个因素的共同影响下, 激光脉冲能量下降率约为 10%。

关键词 激光器; 中红外激光; HF 激光; 脉冲能量; 解离率

中图分类号 TN248.2

文献标识码 A

doi: 10.3788/AOS201939.0214001

Influence of Ground-State HF Molecule and Medium Consumption on Output of Repetitively Pulsed HF Laser

Zhu Feng*, Huang Ke, Tao Bo, Huang Chao, Li Gaopeng,
Shen Yanlong, Luan Kunpeng

Northwest Institute of Nuclear Technology, State Key Laboratory of Laser Interaction with Matter,
Xi'an, Shaanxi 710024, China

Abstract The influences of the concentration of HF molecular and the consumption of the working medium on the laser pulse energy are studied. The laser pulse energy decreases obviously with the increasing of the concentration of HF molecular in the laser, due to the reabsorption of the HF molecule on laser and the strong relaxation effect of the HF molecule on the excited molecules. The laser pulse energy decreases about 1.15% with the increasing of the concentration of HF molecular for 10^{15} cm^{-3} . In addition, each excited HF molecule can emit 0.8 photons, the dissociation rate of SF_6 molecules in the discharge region is about 1%, and the consumption of the working medium is small for a single discharge process and the consumption is about $1/(2 \times 10^5)$ of the total gas amount. The experimental results show that the laser pulse energy is affected seriously by the HF molecular concentration, but weakly by the medium consumption. With the add of the molecular sieves in the laser chamber, the HF molecular concentration is maintained at a level of $1.8 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$, and the laser pulse energy decreases about 10% under the coaction of two factors.

Key words lasers; mid-infrared laser; HF laser; pulse energy; dissociation rate

OCIS codes 140.3070; 140.3538; 140.1550

1 引 言

放电引发的非链式脉冲氟化氢(HF)激光器波长为 $2.5 \sim 3.0 \mu\text{m}$, 可以实现高功率和高重复频率运行, 是一种重要的中红外激光光源^[1-4]。激光器的重

复频率运行一直是重要的研究方向之一。Brunet 等^[5]采用紫外预电离实现激光器稳定辉光放电, 并利用气体循环和介质吸附技术实现激光器 65 Hz 重复频率运行; Harris 等^[6]采用闭合循环方式实现了 HF/DF 激光器 kHz 级高重复频率运行; Apollonov

收稿日期: 2018-08-07; 修回日期: 2018-08-30; 录用日期: 2018-09-25

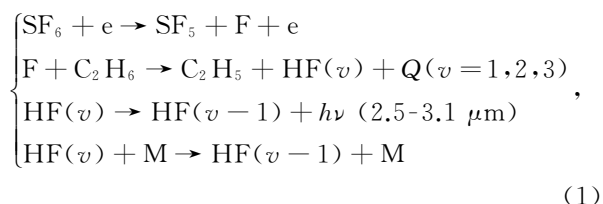
基金项目: 激光与物质相互作用国家重点实验室基金(SKLLIM1602)

* E-mail: zhufeng@nint.ac.cn

等^[7]利用自引发放电技术和粗糙表面阴极实现了大体积均匀放电,获得脉冲能量为 407 J 的激光输出; Butyzykin 等^[8]在 HF/DF 激光器中实现了重复频率为 1.2 kHz、平均功率为 25 W 的激光输出。中国科学院电子学研究所于 2003 年获得了单脉冲能量为 0.4 J 的 HF 激光输出,2007 年实现了单脉冲能量为 1.6 J、重复频率为 1~3 Hz 的输出^[9-11]。中国科学院长春光学精密机械与物理研究所于 2011 年获得了单脉冲能量为 4.95 J、峰值功率为 33.27 MW 的 DF 激光输出,并于 2015 年将输出功率和运行频率分别提高至 150 W 和 50 Hz^[12]。西北核技术研究所于 2008 年获得了单脉冲能量为 0.6 J 的 HF 激光输出,优化后单脉冲能量最大可达到 1 J,激光器可以实现重复频率为 1~50 Hz 的运行^[13-15]。目前,西北核技术研究所已经研制出最大单脉冲能量为 2 J,输出功率为 150 W,重复频率为 100 Hz 的脉冲 HF 激光器。本文从实验角度分析基态 HF 分子和气体介质消耗对重复频率 HF 激光器脉冲能量的影响。

2 基本原理与实验简介

放电引发的非链式脉冲 HF 激光器属于化学激光器,采用 SF₆ 和 C₂H₆ 作为工作气体^[1],化学反应过程和激光动力学过程可以简述为



式中:e 为放电通道内的高能电子;Q 为反应热;v 为 HF 分子振动能级量子数;hν 为辐射的光子能量;M 为消激发分子(主要包括 HF 分子、F 原子、C₂H₆ 分子等)。

实验所用的 HF 激光器利用紫外预电离方式产生均匀体放电引发工作气体 SF₆ 和 C₂H₆ 发生化学反应,生成激发态 HF 分子,抽运反应为不可逆反应,该化学反应需要不断消耗工作气体介质。激光器采用封闭循环设计,可使器件结构紧凑、体积小,然而在重复频率工作模式下,有限的激光器体积内的介质消耗和放电产物的累积会对激光器的长时间稳定出光产生一定的影响。激光器谐振腔采用外腔式平凹腔结构,腔长约 0.9 m,利用能量计测量激光器的脉冲输出能量。采用简单的直接吸收法测量激光器重复频率运行过程中放电区和气体管道内 HF 分子浓度的变化情况,实验系统示意图见图 1,利用

1.3 μm 附近的半导体二极管激光作为测量光源,通过测量激光器腔室前后的光源强度的变化,对激光器内 HF 分子浓度进行监测,获得 HF 分子相对浓度变化情况。正常工作状态下激光器内充入工作气体 SF₆ 和 C₂H₆,腔室内 HF 分子由放电过程产生;在 HF 分子浓度的标定过程中,仅在激光器内充入 HF 气体,通过在激光器内充入一系列不同标准浓度的 HF 气体对测量结果进行标定。激光器采用封闭循环结构设计^[13],利用轴流风机使激光器管道内气体循环流动,保证重复频率激光器的稳定运行。

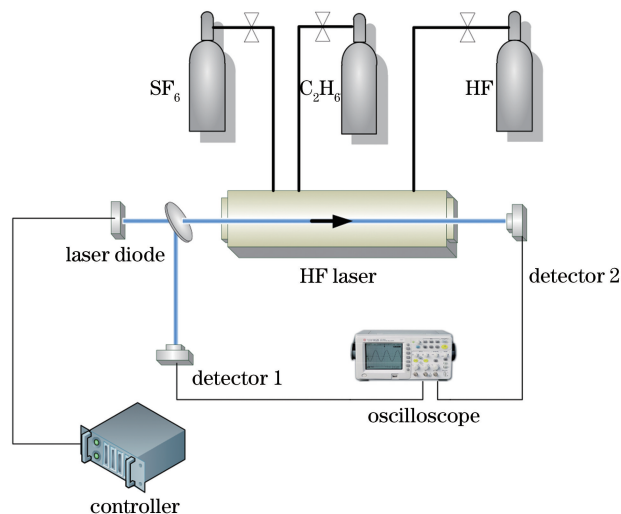


图 1 HF 分子浓度测量实验系统示意图

Fig. 1 Experimental system for measuring concentration of HF molecular

3 实验结果分析

3.1 无吸附条件下实验结果分析

在激光器内没有加入吸附剂条件下开展实验,研究 HF 分子相对浓度变化和工作介质的消耗对 HF 激光脉冲能量的影响。图 2 所示为激光器重复频率分别为 50 Hz 和 100 Hz 条件下测量得到的 HF 分子相对浓度随时间的变化。可以看出,激光器内 HF 分子相对浓度随着激光器运行时间的增加而线性增加,并随着激光器重复频率的提高,HF 分子相对浓度上升速度加快,这与单位时间内生成的 HF 分子数目增多一致。在激光器重复频率为 50 Hz 的运行条件下,通过实验测量得到 HF 分子相对浓度的上升速率为 0.078 s⁻¹;重复频率为 100 Hz 条件下 HF 分子相对浓度的上升速率为 0.168 s⁻¹,约为 50 Hz 条件下上升速率的 2 倍,这也说明激光器不同重复频率运行条件下的实验测量结果一致性较好;激光器的使用时间较长,气室内壁钝化得比较充分。

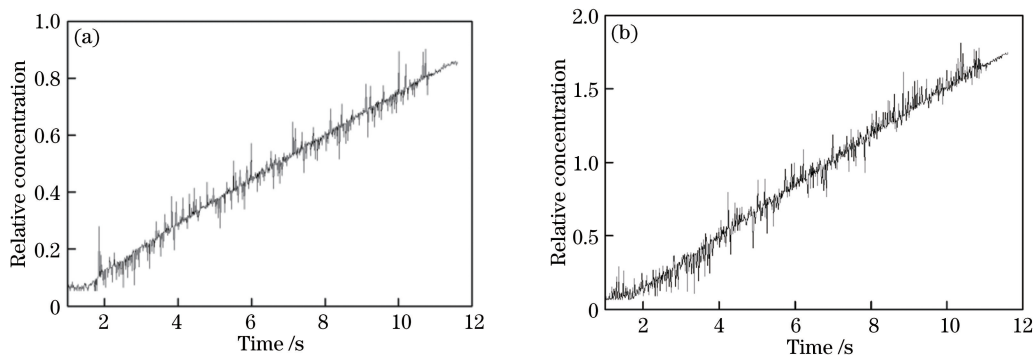


图 2 不同重复频率下激光器内 HF 分子相对浓度的变化。(a) 50 Hz; (b) 100 Hz
 Fig. 2 Change of relative concentrations of HF molecular at different laser repetition rates.
 (a) 50 Hz; (b) 100 Hz

图 3 所示为激光器重复频率分别为 50 Hz 和 100 Hz 时,激光器脉冲能量随着时间的变化情况。可以看出,激光器脉冲能量随着运行时间的增加而线性下降,重复频率为 50 Hz 的条件下 10 s 后激光器脉冲能量下降了约 15%,重复频率为 100 Hz 的条件下 10 s 后激光脉冲能量下降了约 30%,100 Hz 条件下能量下降率为 50 Hz 条件的 2 倍,这与激光器重复频率为 100 Hz 的运行过程中 HF 浓度的增量一致。从激光动力学过程分析可知,激光脉冲能

量下降的主要原因是腔内基态 HF 分子对激发态 HF 分子的强弛豫和基态 HF 分子对激光的再吸收。从化学反应过程分析可知,生成激发态 HF 分子的化学反应过程是一个不可逆过程,激光器重复频率运行气室内工作介质将因该化学反应的进行而持续降低, HF 分子产额减小,从而影响激光输出能量。在不考虑放电因素的影响下,激光脉冲能量的下降主要与封闭气室内 HF 分子浓度的累积以及工作气体的消耗有关。

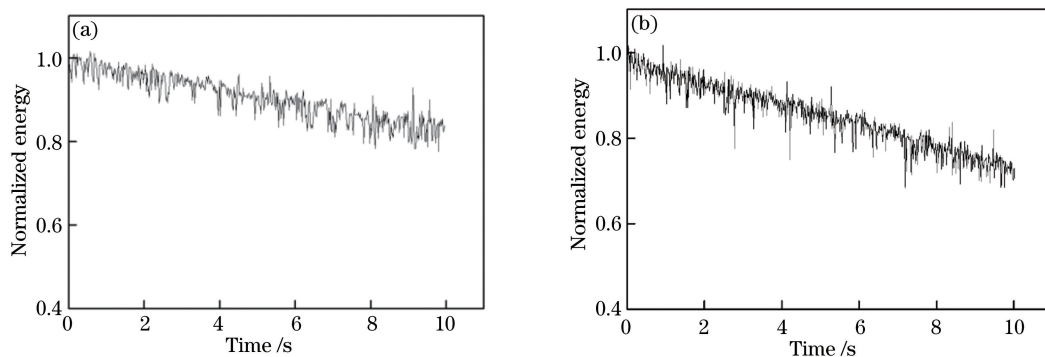


图 3 不同重复频率下归一化激光脉冲能量的变化。(a) 50 Hz; (b) 100 Hz
 Fig. 3 Change of normalized laser pulse energy at different repetition rates. (a) 50 Hz; (b) 100 Hz

从化学反应基本原理可以看出,激光脉冲能量的大小与放电区内化学反应生成的 HF 分子浓度有直接关系。因此,通过实验对激光器放电瞬间放电区内的 HF 分子峰值相对浓度进行了测量。图 4 所示为放电区内的 HF 分子峰值相对浓度随着激光器运行时间的变化情况,可以看出,放电区内 HF 分子峰值相对浓度随着激光器运行时间的增加而增大。需要指出的是,虽然放电区内 HF 分子相对浓度增大,但是与之对应的激光脉冲能量却逐渐降低(图 3)。这主要是因为放电区内 HF 分子浓度的测量受到两个因素的影响,一是放电瞬间新生成的 HF 分子数量,二是激光器重复频率运行过程中持续

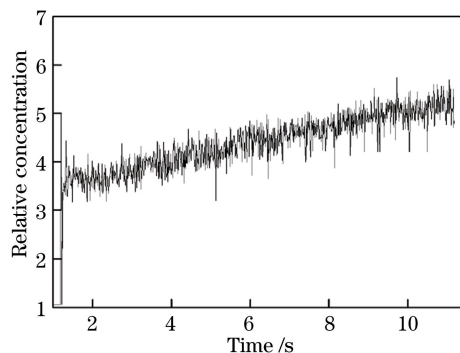


图 4 放电区内 HF 分子峰值相对浓度的变化
 Fig. 4 Change of relative concentration of HF molecular at peak value in discharge region

放电产生的 HF 分子在激光器内的累积形成的浓度本底。因此在激光器重复频率运行条件下,放电瞬间放电区内 HF 分子峰值浓度并不能直接反映激光器的激光输出能力。

通过在激光器内充入不同标准浓度的 HF 气体,对 HF 分子浓度进行标定,可以得到激光器工作过程中实际 HF 分子浓度。图 5 所示为封闭的气室内 HF 分子浓度的累积对激光脉冲能量下降的影响,可以看出,激光脉冲能量随着激光器内 HF 浓度的增加而线性下降。实测激光器内 HF 分子浓度每增加 $1 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$,激光脉冲能量下降约 1.15%。如果要使激光能量下降率控制在 10% 以内,需要将 HF 分子浓度控制在 $8 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ 以内。进一步结合激光动力学过程,假设 SF_6 气体只发生单次分解,可以计算得到激光器单次放电过程中放电区内 SF_6 气体的分解量约 1%,约消耗激光器内 SF_6 气体总量的 $1/(2 \times 10^5)$;结合激光输出能量分析得到单个激发态 HF 分子的发光效率约为 0.8(即 1 个激发态 HF 分子约产生 0.8 个光子)。

3.2 有吸附条件下的实验结果分析

无吸附剂条件下的实验结果表明,封闭的气室内 HF 分子浓度的升高会导致激光脉冲能量降低,为了维持激光输出能量,需要降低激光器内 HF 分子浓度。通过在激光器气室内加入分子筛作为吸附剂,可以及时清除激光器内的 HF 分子,降低 HF 分

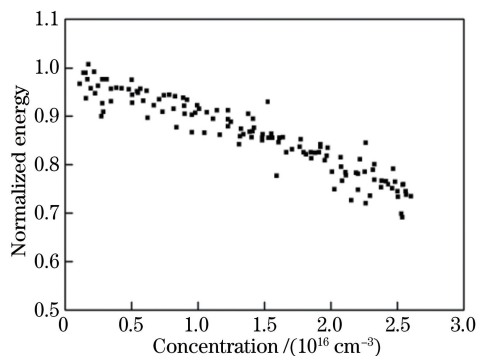


图 5 归一化激光脉冲能量随 HF 分子浓度的变化

Fig. 5 Normalized laser pulse energy versus concentration of HF molecular

子浓度。激光器气室内加入分子筛后,激光器重复频率为 100 Hz 的运行条件下,测量得到的激光器内 HF 分子相对浓度和激光脉冲能量随着时间的变化情况如图 6 所示。从图 6(a)可以看出,在分子筛的作用下,激光器内 HF 分子相对浓度很快达到一个较低的稳定值,不再继续升高,通过标定实测稳定后的浓度维持在 $1.8 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ 的水平。从图 6(b)可以看出,加入吸附剂后激光脉冲能量得到有效维持,实验结果与 3.1 节分析得到的结果一致,然而运行过程中激光脉冲能量仍然呈缓慢下降趋势,分析认为,此时激光脉冲能量的下降是工作介质的持续消耗降低所引起。加入分子筛后实验得到的激光脉冲能量下降约 10%。

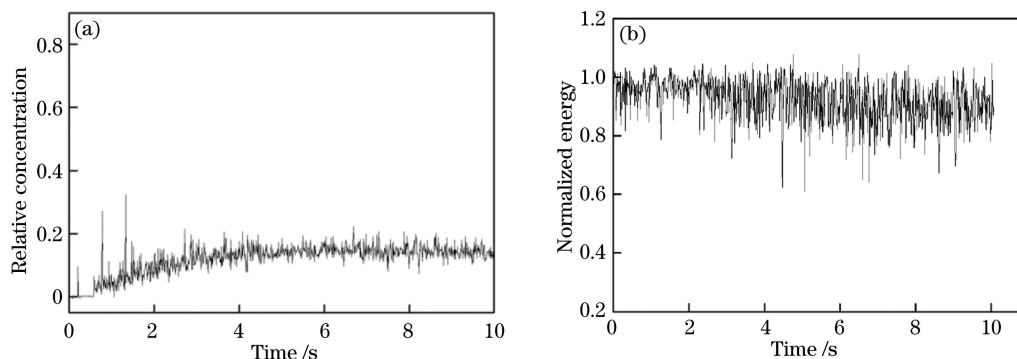


图 6 激光器气室内加入分子筛后,激光器重复频率为 100 Hz 的运行条件下的实验结果。

(a) HF 分子相对浓度; (b) 归一化的激光脉冲能量变化

Fig. 6 Experimental results at repetition rate of 100 Hz with molecular sieves added in laser chamber.

(a) Relative concentration of HF molecular; (b) change of normalized laser pulse energy

通过实验得到吸附前后激光器内 HF 分子浓度变化情况以及激光脉冲能量变化情况。加入吸附剂前,激光脉冲能量随着 HF 分子浓度升高而下降,且激光脉冲能量下降倍率与 HF 浓度的上升倍率一致;加入吸附剂后 HF 浓度得到有效控制,激光脉冲能量维持得较好。通过对激光器工作介质消耗的分

析,发现激光器单次放电实际消耗的工作介质总量较少。结合对变化规律的分析,可以确定,对于重复频率运行的放电引发非链式脉冲 HF 激光器,封闭激光器内 HF 分子浓度的累积对激光脉冲能量影响较大,而工作气体介质的消耗对激光脉冲能量影响较小。后续为延长激光器出光时间,还需要考虑加

入补排气系统。

4 结 论

放电引发的非链式脉冲 HF 激光器是一种典型的介质消耗型化学激光器。采用封闭循环设计可以使激光器的结构紧凑、体积小,并能获得较高的功率输出,然而有限的激光器体积内介质消耗和放电产物 HF 分子的累积均会对激光器的长时间稳定出光产生一定的影响。分析 HF 分子浓度累积和工作介质消耗对重复频率激光脉冲能量的影响规律,得到激发态 HF 分子的发光效率约为 0.8,放电时激光器放电区内 SF₆气体的分解率约为 1%,约消耗气室内 SF₆气体总量的 1/(2×10⁵)。实验结果表明,封闭激光器内的 HF 浓度对激光脉冲能量影响较大,工作气体介质消耗对激光脉冲能量影响较小。激光器内加入分子筛,可以有效降低并控制重复频率运行激光器内 HF 分子浓度水平,短时间运行激光脉冲能量可以得到有效维持,长时间运行还需要考虑加入充排气系统,消除介质消耗对激光脉冲能量降低的影响。在实验用的激光器上,通过将 HF 浓度控制在 1.8×10¹⁵ cm⁻³,激光脉冲能量下降约 10%。

参 考 文 献

- [1] Gross R W F, Bott J F. Handbook of chemical laser[M]. Yin H M, Xie X B, Luo J Y, Transl. Beijing: Science Press, 1987.
格罗斯,博特. 化学激光手册[M]. 尹厚明,谢行滨,罗静远,译. 北京:科学出版社,1987.
- [2] Panchenko A N, Tarasenko V F. On the efficiency of nonchain electric-discharge HF (DF) lasers[J]. Russian Physics Journal, 2004, 47(5): 571-573.
- [3] Vasil'ev B I, Mannoun O. IR differential-absorption lidars for ecological monitoring of the environment[J]. Quantum Electronics, 2006, 36(9): 801-820.
- [4] Guo J Z, Wang J, Zhao H T, *et al.* Output spectrum of continuous wave hydrogen fluoride laser[J]. Laser & Optoelectronics Progress, 2018, 55(2): 021404.
郭建增,王杰,赵海涛,等. 连续波氟化氢激光输出光谱特性研究[J]. 激光与光电子学进展, 2018, 55(2): 021404.
- [5] Brunet H, Mabru M, Voignier F. High energy high average power pulsed HF/DF chemical laser[J]. Proceedings of SPIE, 1995, 2502: 388-392.
- [6] Harris M R, Morris A V, Gorton E K. Closed-cycle 1-kHz-pulse-repetition-frequency HF (DF) laser[J]. Proceedings of SPIE, 1998, 3268: 247-252.
- [7] Apollonov V V, Kazantsev S Y, Saifulin A V, *et al.* Discharge characteristics in a nonchain HF (DF) laser[J]. Quantum Electronics, 2000, 30(6): 483-485.
- [8] Butzykin I L, Velikanov S D, Evdokimov P A, *et al.* Experimental study of pulse-periodic DF laser operation with up to 1200-Hz repetition rate and about 25-W average power[J]. Proceedings of SPIE, 2001, 4184: 162-165.
- [9] Ke C J, Tan R Q, Wu J. Compact non-chain pulsed HF laser[J]. Acta Photonica Sinica, 2003, 32(5): 513-516.
柯常军,万重怡,吴谨. 紧凑的非链式脉冲 HF 激光器[J]. 光子学报, 2003, 32(5): 513-516.
- [10] Ke C J, Tan R Q, Wu J, *et al.* A new discharge type for non-chain pulsed HF/DF laser[J]. Laser Technology, 2008, 32(2): 119-121.
柯常军,谭荣清,吴谨,等. 非链式脉冲 HF/DF 激光的新型引发技术[J]. 激光技术, 2008, 32(2): 119-121.
- [11] Ke C J, Zhang K H, Sun K, *et al.* A periodically pulsed HF/DF gas discharge laser[J]. Infrared and Laser Engineering, 2007, 36(z1): 304-306.
柯常军,张阔海,孙科,等. 重复频率放电引发的脉冲 HF(DF)激光器[J]. 红外与激光工程, 2007, 36(z1): 304-306.
- [12] Pan Q K, Xie J J, Shao C L, *et al.* High power electric-discharge non-chain pulsed DF laser[J]. Chinese Journal of Lasers, 2015, 42(7): 0702001.
潘其坤,谢冀江,邵春雷,等. 高功率放电引发非链式脉冲 DF 激光器[J]. 中国激光, 2015, 42(7): 0702001.
- [13] Yi A P, Liu J R, Tang Y, *et al.* Electrically initiated repetitive-pulsed non-chain HF laser[J]. Optics and Precision Engineering, 2011, 19(2): 360-366.
易爱平,刘晶儒,唐影,等. 电激励重复频率非链式 HF 激光器[J]. 光学精密工程, 2011, 19(2): 360-366.
- [14] Huang K, Tang Y, Yi A P, *et al.* Characteristics of non-chain discharge-pumped pulse HF laser[J]. Infrared and Laser Engineering, 2010, 39(6): 1026-1029.
黄珂,唐影,易爱平,等. 非链式电激励脉冲 HF 激光器[J]. 红外与激光工程, 2010, 39(6): 1026-1029.
- [15] Huang K, Yi A P, Zhu F, *et al.* Discharge initiated non-chain high power repetitively pulsed HF/DF laser[J]. High Power Laser and Particle Beams, 2015, 27(4): 51-55.
黄珂,易爱平,朱峰,等. 放电引发的非链式高功率重复频率 HF/DF 激光器[J]. 强激光与粒子束, 2015, 27(4): 51-55.