

形成Kr II 469.5nm激光振荡的动力学过程

张耀宁 郭挺 张凯 王子非 丘军林

(华中理工大学激光研究所)

用自吸法测试了不同放电条件下在He-Kr空心阴极放电的余辉阶段中 He^m ($2s^3S_1$)态布居密度随时间的变化。进而计算了这一亚稳态原子和氦基态原子彭宁电离速率常数,从而更深入地讨论了这一激光振荡的激励机制。

Kinetic processes of forming laser oscillation on Kr II 469.5nm in He-Kr hollow cathode discharge (HCD)

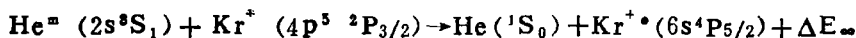
Zhang Yaoning, Guo Ting, Zhang Kai, Wang Zifei, Qiu Junlin

(Institute of Laser, HUST)

Abstract

The varying concentration of He^m ($2s^3S_1$) metastable in He-Kr HCD process was measured by means of self-absorption method with different conditions of discharge. Then the reaction rate coefficient of the He^m ($2s^3S_1$) metastable decay processes was calculated. With these dates we are fairly able to discuss the excitation mechanism of the laser oscillation on Kr II 469.5nm.

对于Kr II 469.5nm激光振荡的激励机制已有不少研究,都认为激光上能级的布居是通过氦亚稳态原子和基态氦离子的能量共振转移反应:



并获得粒子数反转。下面我们从理论上和实验上研究氦亚稳态原子和基态氦离子在余辉阶段的变化规律,从而更深入地讨论脉冲空心阴极放电中Kr II 469.5nm激光振荡激励机制。

一、余辉阶段中He(2s³S₁)态产生和湮灭的动力学过程

根据[1]~[5]的研究结果,我们可以列出He(2s³S₁)态的产生和湮灭过程如下:

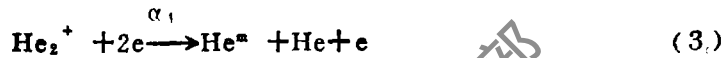
1. 产生过程



式中, e 为大于20eV的高能电子, He^m 为氦亚稳态, α_0 为反应速率常数,它决定于电子碰撞激发截面、电子能量分布,数量级上 $\alpha_0 \sim 10^{-12} \text{cm}^3 \text{s}^{-1}$ 。



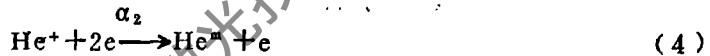
He^* 是氦的激发态原子,通过辐射跃迁布居到氦亚稳态。这一反应速率可表达为 $N(\text{He}^*)R_{m1}/\tau$ 。其中 τ 为 He^* 的平均寿命, $\tau \sim 10^{-6} \text{s}$, R_{m1} 为激发态向 $\text{He}(2s^3S_1)$ 转化的份数, $R_{m1} \sim 70\%$,其余部份则可能转化为 $\text{He}(2s^1S_0)$ 或中途被其他粒子或器壁消激发。



α_1 为 He_2^+ 的复合速率常数,它可以表为

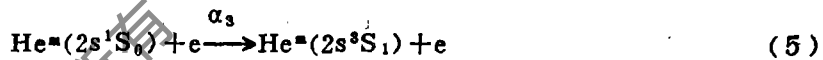
$$\alpha_1 \approx 5 \times 10^{-10} (\text{cm}^3 \text{s}^{-1}) + 5 \times 10^{-27} N_0 (T_e/293)^{-1} (\text{cm}^6 \text{s}^{-1}) \\ + 4 \times 10^{-20} n_e (T_e/293)^{-4} (\text{cm}^6 \text{s}^{-1})$$

如将我们所用的总气压(21Torr)对应的 N_0 及[3]在理论上和实验上对类似放电条件下算得和测得的 T_e 、 n_e 值代入, $\alpha_1 \sim 1 \times 10^{-9} \text{cm}^3 \text{s}^{-1}$ 。



α_2 是 He^+ 的复合速率常数

$$\alpha_2 \approx 5 \times 10^{-10} (\text{cm}^3 \text{s}^{-1}) + 6 \times 10^{-20} n_e (T_e/293)^{-1} (\text{cm}^6 \text{s}^{-1}) \\ \approx 5 \times 10^{-10} \text{cm}^3 \text{s}^{-1}$$



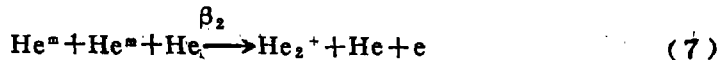
α_3 为两个亚稳态通过电子碰撞转换的反应速率常数, $\alpha_3 \sim 2 \times 10^{-9} \text{cm}^3 \text{s}^{-1}$ 。

以上左面均为低能电子。

2. 湮灭过程



这一反应称为超弹性碰撞, $\beta_1 \sim 4.2 \times 10^{-9} \text{cm}^3 \text{s}^{-1}$ 。



β_2 为三体碰撞反应速率常数, $\beta_2 \sim 2.1 \times 10^{-9} \text{cm}^3 \text{s}^{-1}$ 。值得一提的是,当充气压大于5Torr, He^m 的三体碰撞湮灭速率要大于 $\text{He}^m + \text{He}^m \rightarrow \text{He}_2^+ + e$ 的二体碰撞过程。



β_p 为彭宁电离反应速率常数, $\beta_p \sim 4 \times 10^{-11} \text{cm}^3 \text{s}^{-1}$ 。



β_2 为能量共振转移反应速率常数, $\beta_2 \sim 2 \times 10^{-9} \text{cm}^3 \text{s}^{-1}$ 。此外, 还有扩散到器壁的消激发过程, 这一消激发速率可用

$$\frac{dN_{m_1}}{dt} = -N_{m_1} \frac{D}{\Lambda^2 P} \quad (10)$$

表示。其中D为扩散系数, 就He^m在He气中的扩散而言, $D = 420 \text{cm}^2 \cdot \text{Torr} \cdot \text{s}^{-1}$ 。Λ为放电管特征扩散长度。对于圆柱形放电管, $l \gg r$, 则 $\Lambda^2 = (r/2.4)^2$ 。l为圆柱管长度, r为管半径。P为充气压。代入我们实验所用放电管尺寸, 可知 $D/\Lambda^2 P = 4.7 \times 10^3 \text{s}^{-1}$ 。

二、He 重态布居数的速率方程

按照[1], 可知余辉初期的5μs中, 是空心阴极放电中的电子能量分布从偏离麦克斯韦热平衡分布向麦氏分布转化的弛豫过程。在此期间 $E > 20 \text{eV}$ 的高能电子将迅速减少, 而中能电子(5eV~20eV)将略有所增加。然后, 随电子温度下降, 高能电子进一步减小, 而低能电子增加。在50μs以前电子密度将大致保持在 $10^{12} \sim 10^{13} \text{cm}^{-3}$ (视放电注入能量大小而定)[2,3]。同时, He^m(2s¹S₀)和He⁺将通过(4), (5)二反应迅速减少。由[1]可知He⁺的密度将从 10^{13}cm^{-3} 降到 10^{12}cm^{-3} , 而由[4]可知He^m(2s¹S₀)的密度将从 10^{12}cm^{-3} , 在5μs后降为 10^{10}cm^{-3} 。在此期间He₂⁺密度反略有上升 ($10^{11} \text{cm}^{-3} \rightarrow 10^{12} \text{cm}^{-3}$)[1]。

于是速率方程可写为

$$\begin{aligned} \frac{dN_{m_1}}{dt} = & \alpha_0 n_e N_{H_0} + 0.7 \times 10^9 N_{H_0} + \alpha_1 n_e N_{He_2^+} + \alpha_2 n_e N_{H_0^+} \\ & + \alpha_3 n_e N_{m_2} - N_{m_1} \left(\frac{D}{\Lambda^2 P} + \beta_2 N_{K_r} + \beta_2 N_{K_r^+} + \beta_1 n_e + \beta_2 N_{H_0} \right) \end{aligned} \quad (11)$$

按我们实验中所取放电参数, 可设 $n_e = 10^{12} \text{cm}^{-3}$ 。由充气参数可知 $N_{H_0} = 7 \times 10^{17} \text{cm}^{-3}$, $N_{K_r} = 3.1 \times 10^{15} \text{cm}^{-3}$ (纯氮放电时 $N_{H_0} = 7 \times 10^{17} \text{cm}^{-3}$)。 $N_{K_r^+}$ 估计为 $10^{11} \sim 10^{12} \text{cm}^{-3}$ 。由此作各项的数量级估算:

在1~5μs期间, 高能电子, 低能电子都比较多, 则右边各项依次为

$$\begin{aligned} \frac{dN_{m_1}}{dt} = & 10^{17} + 10^{16} + 10^{14} + 10^{15} + 10^{15} \\ & - 10^{18} - 10^{14} - 10^{15} - 10^{14} - 10^{14} \quad (\text{cm}^{-3} \text{s}^{-1}) \end{aligned}$$

可见 N_{m_1} 在此期间是增加的。这主要是由高能电子对He的直接激励及He⁺的串级辐射跃迁布居。增涨速率约为 $10^{17} \text{cm}^{-3} \text{s}^{-1}$ 。

在5~50μs期间, 由于高能电子 n_e 迅速下降, 及 N_{m_1} 的增加, 上述右边各项发生变化, 它们分别为

$$\begin{aligned} \frac{dN_{m_1}}{dt} = & 10^{15} + 10^{14} + 10^{15} + 10^{15} + 10^{14} \\ & - 10^{14} - 10^{15} - 10^{16} - 10^{15} - 10^{15} \quad (\text{cm}^{-3} \text{s}^{-1}) \end{aligned}$$

这时湮灭速率超过了产生速率, 并且湮灭过程是以彭宁电离过程为主, 它的速率为 10^{16}cm^{-3}

s⁻¹。对于纯氦而言，则主要是第九、第十两项所代表的超弹性碰撞反应和三体碰撞反应起作用。

因此，对于He-Kr混合气体放电，速率方程可简化为

$$\frac{dN_{m_1}}{dt} = -\beta N_{m_1} \quad (12)$$

其中 β 在数量级上为(11)式括号诸项之和，而大致等于 $\beta_p \cdot N_{Kr}$ ，因为此项大于其他各项1~2个数量级，而且也随充氦量而变化。对于纯He放电，由于 N_H 基本不变， n_e 大致保持在一个数量级上，所以速率方程可简化为：

$$\frac{dN_{m_1}}{dt} = -\beta' N_{m_1} - \beta'' N_{m_2}^2 \quad (13)$$

式中， β' 大致为 $\left(\frac{D}{\Lambda^2 P} + \beta_1 n_e\right)$ ，而 β'' 大致为 $\beta_2 N_H$ 。

三、自吸法测量 $N_{m_1}(t)$ 及有关速率常数的计算

仿照Harrison的方法^[6]，我们分别测量了在有反射镜和调偏反射镜时的He I 388.9nm ($3P^2P - 2S^2S_1$)谱线的自发辐射强度，然后由

$$\frac{I_R(t)}{I_D(t)} = RG(k_0 d) \quad (14)$$

式算出 k_0 。这里 k_0 为吸收系数 k 中的比例常数， $k_\nu = k_0 \cdot g(\nu - \nu_0)$ ， $g(\nu - \nu_0)$ 是谱线的归一化线型因子。 d 为放电管长度。而 $G(k_0 d)$ 是由谱线线型决定的一积分函数，可由计算机算出数值解。 R 为反射镜的反射率， $I_D(t)$ 是无反射镜时测出的谱线强度， $I_R(t)$ 则是引入反射镜后而增加的谱线强度。将实验数据代入便可得到 $k_0(t)$ 值。而根据^[7]，如线型取多普勒加宽线型

$$k_0 = \frac{2}{\Delta\nu_D} \cdot \left(\frac{\ln 2}{\pi}\right)^{1/2} \cdot \frac{\lambda_0^2}{8\pi} \cdot \frac{g_u}{g_m} \cdot N_m A_{m,m} \quad (15)$$

式中， $\Delta\nu_D$ 为多普勒线型半宽度， λ_0 为谱线中心波长， g_u 、 g_m 分别为上下能级统计权重， N_m 为下能级粒子密度， $A_{m,m}$ 为该谱线爱因斯坦自发辐射系数。将有关常数代入

$$N_{m_1}(t) = 1.95 \times 10^{11} \times T^{1/2} \times k_0(t) \quad (\text{cm}^{-3}) \quad (16)$$

由此式我们算出了二种情况下在余辉阶段氦亚稳态密度 $N_{m_1}(t)$ 。对He-Kr混合气体(He为21Torr, Kr为0.1Torr)放电的情况 $N_{m_1}(t)$ 在图1中由曲线1表明；对纯He放电情况下的 $N_{m_1}(t)$ 以曲线2表明。图2为实验所摄得的纯氦放电时He388.9nm谱线辐射强度随时间变化的照片。我们以放电电压脉冲讯号为触发脉冲，故照片上的起点可以认为是放电开始，横坐标每格5 μ s，而我们的放电电流波形可见，放电脉宽(全宽度)为5 μ s，因此余辉阶段可以图1中的5 μ s作为起点。这里我们放电电压为1200V。

对 $N_{m_1}(t)$ 求一次逐差 $\Delta[N_{m_1}(t)]$ ，作 $\Delta[N_{m_1}(t)]/\Delta t - N_{m_1}(t)$ 曲线，分别就He-Kr混合气体放电和纯He放电二种情况，得到图3和图4，横坐标为 $N_{m_1}(t)$ ，纵坐标为 $\Delta[N_{m_1}(t)]/\Delta t$ ，两者都用对数坐标尺。由于 $N_{m_1}(t)$ 的拟合曲线取精度有限，单位又很大，所以算出的

逐差离散性较大。但可看到两种情况，逐差随 $N_{m_1}(t)$ 不同的变化趋势，前者为线性变化，后

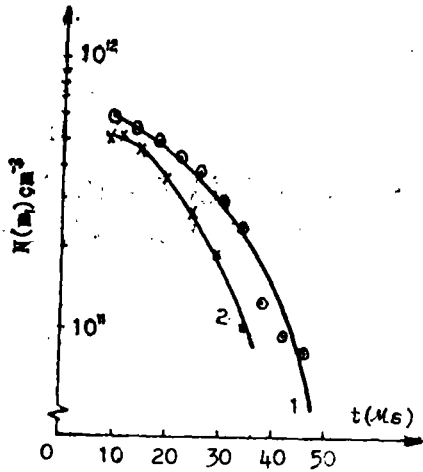


图1 He-Kr混合气体放电和纯He放电的余辉阶段中 $\text{He}^{II}(2s^3S_1)$ 随时间变化曲线

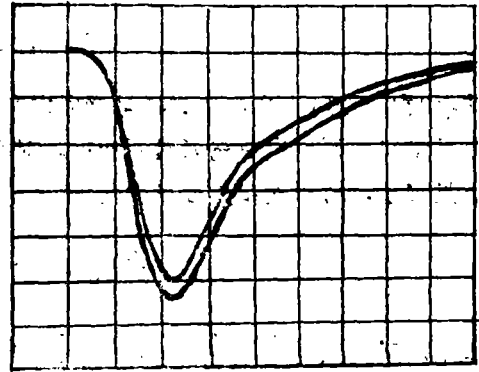


图2 纯He放电时He I 388.9nm谱线在加(下)与不加(上)反射镜时的谱线强度照片。1V/格, 5μs/格

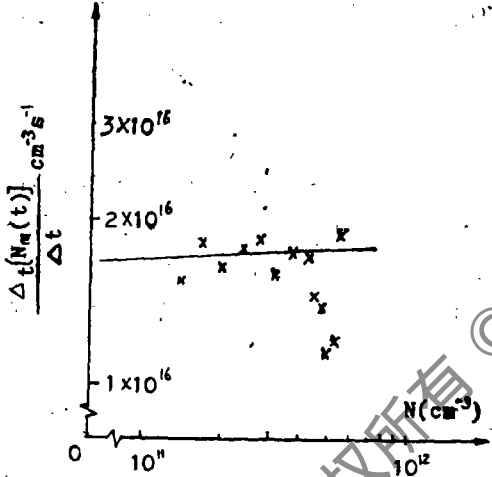


图3 He-Kr混合气体放电之 $N_{m_1}(t)$ 对时间的一次逐差

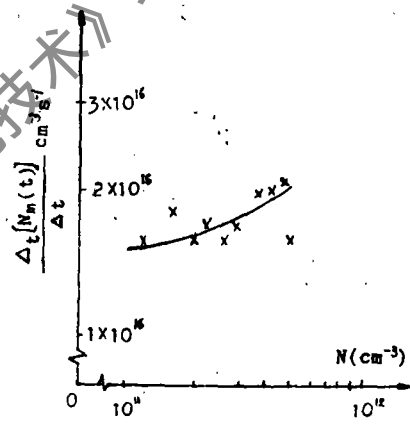


图4 纯He气体放电之 $N_{m_1}(t)$ 对时间的一次逐差

者呈二次曲线变化。这正好符合我们在上一节的推论。就图3求斜率可得 $\beta \approx 10^4 \text{ s}^{-1}$ 。由我们所充Kr气压可知 N_K 为 $3.1 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ ，故由 $\beta = \beta_F \cdot N_K$ ，可算出 $\beta_F \sim 10^{-11} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$ 。这和其他人所测的结果相吻合。对图4的 $\Delta[N_{m_1}(t)]$ 再对 N_{m_1} 求一次逐差， $\Delta^2[N_{m_1}(t)] = \Delta_N[\Delta[N_{m_1}(t)]]$ 。则作 $\Delta^2[N_{m_1}(t)]/\Delta N_{m_1} - N_{m_1}(t)$ 曲线，可得一条直线，其斜率为 $\beta' = 4.5 \times 10^{-8} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$ ，截距为 $\beta'' = 2 \times 10^2 \text{ s}^{-1}$ 。再分别由

$$\beta' = \beta_1 n_0 + \frac{D}{\Lambda^2 P} \quad \text{及} \quad \beta'' = \beta_2 \cdot N_{He} / N_{m_1}$$

可算出 $\beta_2 \approx 10^{-18} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$ ， $\beta_1 \approx 10^{-10} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$ 。这比上面给出的速率常数都要小得多，这是因为此时产生速率和湮灭速率可以相比拟（见第二部分），因此 β' 和 β'' 中还包含产生过程带

来的影响。

四、氦离子布居数的速率方程及Kr I 469.5nm激光激励机制的讨论

同氦亚稳态布居数速率方程推出的方法一样，我们可由氦离子布居数发生变化的动力学过程列出速率方程：

$$\frac{dN^+}{dt} = \alpha_0' N_{K, n_0} + \beta_P N_{m_1} N_{K, r} - N^+ \left(\frac{D_{K, r}^+}{\Lambda^2 P} + \beta_R N_{m_1} + \alpha_2' n_0 \right) \quad (17)$$

式中， α_0' 、 α_2' 分别为电子碰撞电离速率和氦离子复合速率，数量级上为 10^{-11} 及 10^{10} ($\text{cm}^3 \text{s}^{-1}$)。 $D_{K, r}^+$ 为 Kr^+ 在He中扩散系数， $D_{K, r}^+ = 410 \text{cm}^2 \text{Torr s}^{-1}$ 。因此也可作数量级上估计，在 $5\mu\text{s} \sim 50\mu\text{s}$ 期间，右端各项依次有：

$$\frac{dN^+}{dt} = 10^{10} + 10^{10} - 10^{13} - 10^{15} - 10^{15} \quad (\text{cm}^{-3} \text{s}^{-1})$$

可见在余辉的前 $50\mu\text{s}$ 中略有增加，而且由于余辉阶段高能电子密度迅速减小， Kr^+ 产生的速率主要决定于彭宁电离过程。这样氦离子密度 N^+ 的变化和充氦量有很大关系。然而，充Kr太多，要降低电子温度，减少初始的 He^+ 及 He^0 的密度，这会降低 N_{m_1} 的最大值，从而减少了彭宁电离反应速率，因而这里有一个合理的He-Kr充气比存在。对于同样的充气比，当总气压高时，E/P值降低，也将会影响 N_{m_1} 的产生速率。我们就同样充气比($P_{\text{He}}:P_{\text{Kr}} = 267:1$)的二种总气压(19Torr和4Torr)在同样的放电电压(2000V)下放电。所测得的 $N_{m_1}(\text{max})$ 分别为 10^{12} 和 10^{13}cm^{-3} 。由于激光上能级的泵浦速率为：

$$\frac{dN(K, r^+)}{dt} = \beta_R \cdot N_{m_1} \cdot N^+ \quad (18)$$

因此还存在一个最佳总充气压。初步的最佳化试验可知，当放电电压为5000V~5000V，总气压取20Torr、He-Kr充气比为267:1时激光输出最强。另外从E/P值会影响 N_{m_1} 值可知，最佳总气压也还和所加脉冲电压峰值有关，电压愈高，最佳总气压可取得愈高，当然这是在不起弧为前提之下而言。

五、结 论

以上分析了在He-Kr脉冲空心阴极放电的余辉阶段中He ($2s^3S_1$) 亚稳态及 Kr^+ (2P) 基态产生及湮灭的动力学过程。对由此得到的速率方程作了数值上的估计，可推断He ($2s^3S_1$) 态在余辉初达到最大值，而后的衰减主要由于它和氦原子之间的彭宁电离反应。用自吸法测得了氦亚稳态在余辉阶段布居数—— $N_{m_1}(t)$ 。作数据处理后所算出的彭宁反应速率常数和文献上所提供的数值在数量级上相吻合；理论上推算的 $N_{m_1}(t)$ 衰减速率为 $10^{10} \text{cm}^{-3} \text{s}^{-1}$ ，而实验测得的 $N_{m_1}(t)$ 的衰减速率也为 $10^{10} \text{cm}^{-3} \text{s}^{-1}$ 。因此证实了上述动力学过程分析是正确的。进而讨论了影响激光振荡的若干参数，从而对激光振荡的激励动力学机制有了进一步的认识。

参 考 文 献

- [1] Colin S. Willet, Introduction to Gas Lasers, Population Inversion Mechanisms, Oxford, Pergamon Press, 1974.

- [2] R.Deloche, A.N.Soldetov, The 6th Int.Conf.on Gas Discharges and Their Applications, 1980, P.15.
- [3] M.D.Scheer, 同上, 1980, P.82.
- [4] J.Phys.D, Appl.Phys., 1981, No.14, P.35.
- [5] M.Janossy and P.Tuorinen, Acta Physica Academiae Scientiarum Hungaricae, 1979, No.46, P.167.
- [6] J.A.Harrison, Proc.Phys.Sci., 1959, Vol.73, P.841.
- [7] Mitchell A.C.G.and Zamansky.M.W., Resonance Radiation and Excited Atoms Cambridge, University Press, 1934.

作者简介: 张耀宁, 见本刊1987年, Vol.11, No.2.

郭振, 男, 1964年10月出生。硕士。现在中科院上海光机所攻读博士。

张凯, 男, 1964年12月出生。硕士。现在华南激光应用发展公司。

收稿日期: 1988年3月21日。

· 简 讯 ·

金属蒸气激光器承制厂易手

美国加州弗里蒙特的Cooper Laser Soniss公司的等离子动力小组(PK小组)改属澳大利亚Meta Laser公司, 转让价约2百万美元。PK小组将改名为金属激光技术公司。PK小组的Anderson担任总裁, 澳方金属激光公司McIntosh任高级副总裁。Anderson说, 金属激光公司今年(1988年)推出10W铜蒸气激光器(CVL), 其特点是微机控制, 气冷, 单相供电运转。产品系列包括3~40W铜蒸气激光器和0.7~4W的金蒸气激光器。

译自 Laser Focus, 1988, April, P.14.

于祖兰 译 封鸿渊 校

· 简 讯 ·

适合于单模光纤的二维波导管

美国新泽西州萨默塞特NSG公司推出首批商用单模光纤的二维波导组件。这种技术最近已用于多模光纤系统(参阅LF/E-O二月号, P.125)。WDM组件分别使1300和1550nm波长光波传送1.3、1.55m。单模光纤典型损耗为2~3dB, 而50 μ m光纤损耗为2dB。

译自 Laser Focus, 1988, April, P.16.

于祖兰 译 封鸿渊 校