

钙, 锶, 钡和汞离子激光中的共振辐射俘获效应^{*}

毛邦宁 潘佰良[†] 陈 立 王煜博 王丽敏

(浙江大学物理系 杭州 310027)

(2006 年 12 月 5 日收到 2007 年 2 月 3 日收到修改稿)

根据 Holstein 的共振辐射俘获理论, 讨论了气体温度和辐射俘获下能级粒子数密度对辐射俘获上能级有效辐射寿命的影响, 显示辐射俘获下能级粒子数密度是辐射俘获效应中的主导因素. 计算了钙, 锶, 钡和汞四种离子七条共振-亚稳能级跃迁激光在不同电离率下产生共振辐射俘获效应的阈值条件, 发现当电离率为 5% 时这类激光的出光温度与共振辐射俘获的阈值温度相一致, 这与实验得出的电离率为 3%—5% 相符合. 表明达到共振辐射俘获阈值条件是该类激光实现粒子数反转的重要因素.

关键词: 共振辐射俘获, 离子共振-亚稳跃迁激光, 阈值温度

PACC: 4255H, 5170

1. 引 言

钙, 锶, 钡和汞蒸气激光器可输出 370.6 nm 到 6.45 μm 之间的多条激光谱线, 广泛应用于生物医疗, 抽运染料激光器和固体可调谐激光器, 电视显像等领域, 个别谱线特别适用于半导体技术, 微加工, 制备聚合物光波导等^[1-3]. 该类激光具有多种激光机理, 包括原子和离子共振-亚稳跃迁激光(简称 $R-M$ 跃迁), 离子复合激光, 以及亚稳-亚稳跃迁激光等^[4]. 其中离子 $R-M$ 跃迁激光主要通过电子碰撞激励以及激光上能级共振态和离子基态之间的辐射俘获效应实现能级反转^[5]. 辐射俘获效应一般发生在有较大的自发辐射概率($\sim 10^8/\text{s}$)的两个能级之间, 当较低的能级有着足够的粒子数密度和气体厚度时, 由于气体的再吸收使得上能级的有效辐射寿命将大大增加, 具体效应还与气体温度相关^[6]. 辐射俘获效应是广泛存在于气体激光中的一种效应^[7], 最常见的是发生在第一共振态和基态之间又称为共振辐射俘获效应, 它是 $R-M$ 跃迁激光能级反转的必要条件^[8]; 而在紫外铜离子激光中, 激光下能级 $4p^4 F_{2,3,4}^\circ$ 与位于其下的亚稳态 $4s^3 D_{1,2,3}$ 之间的辐射俘获效应延长了激光下能级的有效辐射寿命, 对激光的粒子数反转以及激光功率都有着消极的影响^[7]. 因此详细研究辐射俘获理论中的三个参量——管

径、气体温度和辐射俘获下能级粒子数密度对辐射俘获上能级有效辐射寿命的影响, 对理解与辐射俘获效应相关的气体激光的动力学过程以及实验参量的设计都有着重要的意义.

文献 [8] 在原子 $R-M$ 跃迁激光中讨论了管径和共振辐射俘获上能级有效辐射寿命的关系, 得出了辐射俘获下能级阈值粒子数密度随管径减小而增大的结果^[8]. 而在离子 $R-M$ 跃迁激光中, 气体的电离率成为了重要的参数. 本文借助考察钙, 锶, 钡和汞离子 $R-M$ 跃迁激光中的共振辐射俘获效应, 进一步分析了气体温度和辐射俘获下能级粒子数密度在辐射俘获效应中的作用, 确认与气体温度相比辐射俘获下能级粒子数密度主导着辐射俘获上能级的有效辐射寿命, 并进一步详细讨论了该类离子 $R-M$ 跃迁激光在不同电离率下的辐射俘获阈值参量. 计算结果表明, 当电离率从 0.1% 增加到 100%, 钙, 锶, 钡和汞中的四条共振谱线的阈值温度下降了 25.8% 到 28.6% 不等, 激光的出光温度接近电离率为 5% 时对应的共振辐射俘获阈值温度, 这与实验报道的 3%—5% 的电离率相符, 揭示了离子 $R-M$ 跃迁激光上下能级粒子数反转的阈值条件与共振辐射俘获效应的阈值条件之间的内在联系.

2. 理论计算

金属蒸气激光的激光介质都为光学厚气体, 具

^{*} 国家自然科学基金(批准号: 10574111, 10374081)和国家高技术研究发展计划(批准号: 2004AA84TS04)资助的课题.

[†] 通讯联系人. E-mail: pbl66@zju.edu.cn

有长圆柱形的几何结构和以多普勒展宽为主的谱线展宽机理.在此条件下,辐射俘获效应上能级到下能级的有效跃迁概率具有以下形式^[6,9]:

$$A_{\text{eff}} = \begin{cases} A \exp[-0.65(k_0 R)^{0.81}] & (k_0 R < 3), \\ 1.6A \{k_0 R + \phi \tanh(k_0 R + \phi)\}^2 & (k_0 R > 3). \end{cases} \quad (1)$$

式中 $\phi = 0.8225$ 是使 A_{eff} 在 $k_0 R = 3$ 处保持连续而引入的归一化因子^[10], A 为共振能级到基态的自发辐射概率, R 为圆柱半径, k_0 为中心波长的吸收系数,由下式给出:

$$k_0 = n \frac{\lambda_0^2}{8\pi} \frac{g_2}{g_1} \sqrt{\frac{\ln 2}{\pi}} \frac{A}{\Delta v_D}, \quad (2)$$

其中 λ_0 为中心波长; n 为辐射俘获下能级粒子数密度.因脉冲前金属离子主要以基态存在,又激光脉冲出现在电流脉冲的前沿,因此可认为 $n = \eta n'$, n' 为蒸气密度, η 为金属蒸气电离率; g_1, g_2 分别为辐射俘获下能级和辐射俘获上能级的简并度; $\Delta v_D = 7.162 \times 10^{-7} v_0 \sqrt{T/M}$ 为多普勒半高全宽, M 为气体分子的原子量,中心频率 $v_0 = c/\lambda_0$, T 为气体的绝对温度.在本文中以激光管内气体的平均温度代替.

考虑管内的温度径向分布,按照金属蒸气激光中的一般处理方法,当管内气体导热系数具有 $k = BT^a$ 的形式时, B, a 为常数,距离激光管轴心 r 处的温度可写为^[11]

$$T(r) = \left(T(R)^{1+a} + \frac{1+a}{4B} q_v (R^2 - r^2) \right)^{1/(1+a)}, \quad (3)$$

式中 q_v 为单位体积功率密度.由此可得其管内气体平均温度为

$$\bar{T} = \frac{4B}{2+a} [T(0)^{2+a} - T(R)^{2+a}] / q_v R^2. \quad (4)$$

在钡激光中一般使用氖气作为缓冲气体,其导热系数为 $k_{\text{Ne}} = 9.4 \times 10^{-4} T^{0.685}$ (800—3000 K)^[11],在钙、锶和汞激光中则一般使用氦气,根据文献^[12]的公式拟合得其导热系数为 $k_{\text{He}} = 3.07 \times 10^{-3} T^{0.69}$ (600—1000 K).

对于自加热型金属蒸气激光器,金属蒸气由放置在激光管内壁的金属经放电自加热产生,金属蒸气气压公式为^[13]

$$\lg P = -\frac{A}{T} + B + C \lg T + 10^{-3} DT, \quad (5)$$

式中 A, B, C, D 为相关常数,可由文献^[13]获得, P 为金属在绝对温度为 T 时产生的饱和蒸气压强,单

位为 133.3 Pa,相关系数可由文献^[13]获得.因一般蒸气压强较低,可通过理想气体状态方程计算其粒子数密度.

一般定义共振能级跃迁到基态的阈值有效跃迁概率为

$$(A_{\text{eff}})_{\text{th}} = A_{2i} + A_{2j} + \dots \quad (6)$$

A_{2i}, A_{2j} 表示共振能级跃迁到其他较低能级的自发辐射概率,具体各跃迁概率见表 1.对应的共振能级有效辐射寿命为

$$\tau_{\text{th}} = \frac{1}{(A_{\text{eff}})_{\text{th}} + A_{2i} + A_{2j} + \dots}. \quad (7)$$

该阈值条件含义为共振能级跃迁到基态的有效跃迁概率等于其跃迁到其他较低能级的概率之和.

表 1 Ca⁺, Sr⁺, Ba⁺ 和 Hg⁺ 的相关跃迁谱线波长,能级和自发辐射概率

元素	基态离子 电离能/eV	波长/nm	上能级	下能级	A/s^{-1}
Ca ⁺	6.1132	393	4p ² P _{3/2}	4s ² S _{1/2}	1.47×10^8
		854.2	4p ² P _{3/2}	3d ² D _{5/2}	1.175×10^6
		397	4p ² P _{1/2}	4s ² S _{1/2}	1.4×10^8
		866.2	4p ² P _{1/2}	3d ² D _{3/2}	1.25×10^6
Sr ⁺	5.5949	408	5p ² P _{3/2}	5s ² S _{1/2}	3.55×10^7
		1032.7	5p ² P _{3/2}	4d ² D _{5/2}	1.5×10^6
		421.7	5p ² P _{1/2}	5s ² S _{1/2}	6.35×10^7
		1091.4	5p ² P _{1/2}	4d ² D _{3/2}	2.7×10^6
Ba ⁺	5.2117	455.4	6p ² P _{3/2}	6s ² S _{1/2}	1.17×10^8
		614.17	6p ² P _{3/2}	5d ² D _{5/2}	3.7×10^7
		493.4	6p ² P _{1/2}	6s ² S _{1/2}	9.55×10^7
		649.7	6p ² P _{1/2}	5d ² D _{3/2}	3.32×10^7
Hg ⁺	10.4375	165	6p ² P _{3/2}	6s ² S _{1/2}	12×10^8
		398.4	6p ² P _{3/2}	6s ² D _{5/2}	3.2×10^6

3. 计算结果与讨论

由(1)(2)两式可知,在离子 R - M 跃迁激光中共振能级跃迁到基态的有效跃迁概率 A_{eff} 与圆柱体半径 R ,基态粒子数密度 n 和气体温度 T 有关.考虑激光器实际工作温度范围,图 1 给出 $R = 1$ cm 时,钙、锶、钡和汞离子的共振谱线在不同气体温度下达到共振辐射俘获阈值条件所需的阈值基态离子粒子数密度.由图知,平均气体温度改变 200 K,在钙、锶、钡和汞离子激光中的阈值基态粒子数密度仅分别改

变了 8%、8%、6% 和 12%。由 (5) 式以及相关系数计算可得,在金属蒸气电离率为 5% 的情况下,钙、锶和钡的温度只需增加 3 K (分别为 917—920 K、859—862 K 和 879—882 K),汞在室温下,即可提供足够的离子基态粒子数密度。由此说明,在金属蒸气激光器实际工作时,与气体的温度相比,金属蒸气粒子数密度在共振辐射俘获效应对上能级的有效辐射寿命起到决定作用。

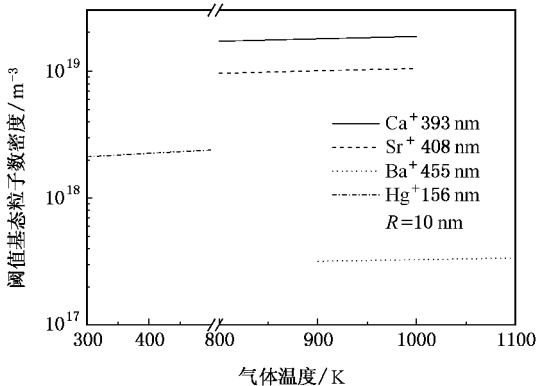


图 1 不同气体温度下的阈值基态粒子数密度

图 2 显示了钙、锶、钡和汞离子中四条共振谱线上能级的有效辐射寿命随基态离子数密度的变化关系。在钙、锶和汞离子中,其共振能级有效辐射寿命均在基态粒子数密度约等于 $1 \times 10^{18} \text{ m}^{-3}$ 时开始明显上升,到约 $1 \times 10^{20} \text{ m}^{-3}$ 时饱和,而在钡离子中,同样在基态粒子数密度增加两个数量级的过程中实现了快速上升至饱和的过程,但其对应的基态粒子数密度则要低两个数量级,约为 $1 \times 10^{16} \text{ m}^{-3}$ 至 $1 \times 10^{18} \text{ m}^{-3}$ 。对照表 1 可知,共振能级的饱和有效辐射寿命均接近于其跃迁到亚稳能级的自发辐射寿命,而从 (7) 式可看出,这是共振跃迁的有效跃迁概率 A_{eff} 不断减少的必然结果。

对放电自加热型金属蒸气激光器而言,蒸气粒子数密度由管壁温度决定。当电离率一定时,管内气体温度和基态离子粒子数密度是相互联系的参量,根据 (1)(2)(5)(6) 式可得出达到共振辐射俘获时的阈值温度和对应的阈值基态粒子数密度。图 3 给出了 $R = 1 \text{ cm}$ 时,不同电离率对应的共振辐射俘获阈值温度。当电离率从 0.1% 增加到 100% 时,钙、锶、钡和汞离子中对应的共振辐射俘获阈值温度分别下降 301、283、270 和 114 K,分别下降了 27.12%、27.21%、25.8% 和 28.6%。从图 3 可知电离率越大所需的阈值温度越低,意味着如能获得较高的电离

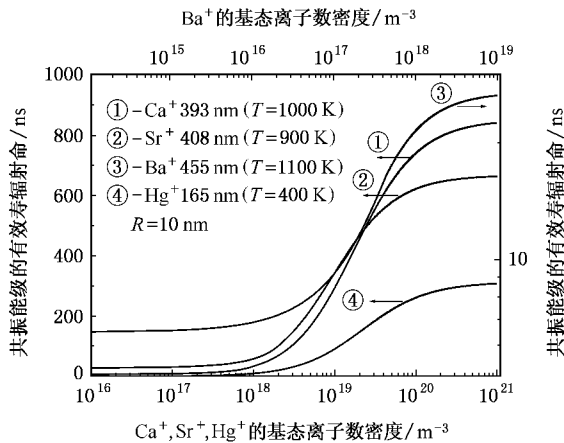


图 2 共振能级有效辐射寿命随基态粒子数密度的变化

率,激光介质将可能在较低工作温度下获得激光输出。

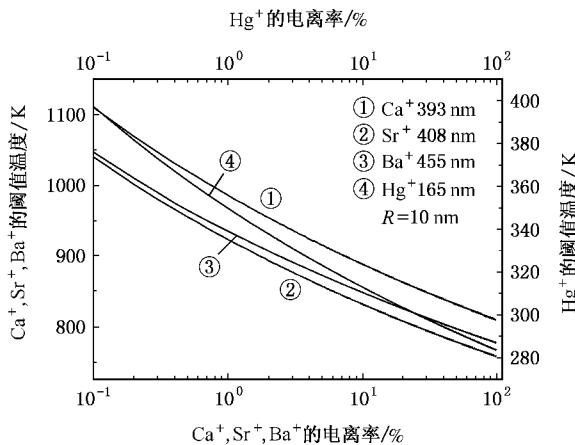


图 3 Ca^+ 、 Sr^+ 、 Ba^+ 和 Hg^+ 中的共振谱线在不同电离率下的阈值温度

表 2 计算了不同电离率时钙、锶、钡和汞四种金属离子中的七条共振谱线达到共振辐射俘获时的阈值参数和对应的 R - M 跃迁激光的出光管壁温度^[14—17]。对照文献报道的锶和钡离子激光脉冲前的电离率约为 3%—5%^[18—20],从表中可以看出,钙、锶和汞离子 R - M 跃迁激光的出光温度与电离率为 5% 对应的共振辐射俘获阈值温度最为接近,相差不超过 5%。而在钡离子激光中,出光温度比电离率为 5% 对应的阈值温度差距较大,其原因可能有两点:其一,因为缺乏自加热型纵向脉冲放电激励钡离子 R - M 跃迁激光的参考文献,表中给出的温度是在空心阴极放电条件下获得,其蒸气密度与阴极温度的关系并非完全符合 (5) 式;其二,钡离子 R - M 跃迁激

光到达共振辐射俘获阈值条件的基态粒子数密度比其他三种离子要低约两个数量级(见图2),难以产生足够的增益,需要提高管壁温度来产生更高的增益介质密度.考虑到原子 R - M 跃迁激光中激光出光温度与共振辐射俘获阈值温度的一致性,以及离子

R - M 跃迁激光与原子 R - M 跃迁激光具有类同的激光机理,本文认为在离子 R - M 跃迁激光中,共振辐射俘获阈值温度与激光出光温度的一致性反映了在该类激光粒子数反转过程中,达到共振辐射俘获阈值条件是出光的一个必要条件.

表2 不同 η 下的共振辐射俘获阈值参量计算结果与对应激光出光温度

元素	$n_{\text{th}}/10^{19} \text{ m}^{-3}$	$\tau_{\text{th}}/\text{ns}$	T_{th}/K				实验值/K	R/mm
			$\eta = 1\%$	$\eta = 5\%$	$\eta = 10\%$	$\eta = 100\%$		
$\text{Ca}^+ 393 \text{ nm}$	1.6	426	988	917	890	811	$873^{[13]}$	9.5
$\text{Ca}^+ 397 \text{ nm}$	3.0	400	1018	943	914	830		
$\text{Sr}^+ 408 \text{ nm}$	8.5×10^{-1}	333	936	868	842	766	$873^{[14]}$	7.5
$\text{Sr}^+ 422 \text{ nm}$	8.5×10^{-1}	185	937	868	842	766		
$\text{Ba}^+ 455 \text{ nm}$	2.4×10^{-2}	14	921	860	836	767	$983^{[15]}$	14
$\text{Ba}^+ 493 \text{ nm}$	4.3×10^{-2}	15	943	880	855	782		
$\text{Hg}^+ 165 \text{ nm}$	1.8	156	362	349	337	303	$373^{[16]}$	2

4. 结 语

本文分析了共振辐射俘获阈值效应中上能级有效辐射寿命与气体温度和基态粒子数密度的关系,认为基态粒子数密度是共振辐射俘获效应中的主导因素.计算了钙、锶、钡和汞离子共振谱线在不同电

离率下的共振辐射俘获阈值温度和阈值粒子数密度,显示较高的电离率能降低阈值温度.对钙、锶、钡和汞四种离子七条谱线在不同电离率下达到共振辐射俘获阈值参量的计算与实验对比显示,离子 R - M 跃迁激光的出光温度接近于其对应共振谱线的共振辐射俘获阈值温度,表明共振辐射俘获效应是离子 R - M 跃迁激光的反转机理中的重要因素.

[1] Latush E L , Sem M F , Koptev Y V , Bukshpum L M , Atamas S N 1993 *Proc. SPIE* **2110** 106

[2] Mackanos M A , Ivanov B , Soldatov A N *et al* 2004 *Proc. SPIE* **5319** 201

[3] Pan B L , Chen G , Fang B M , Mao B N , Yao Z X 2004 *Chin. Phys.* **13** 2071

[4] Chen G , Feng J , Pan B L , Yao Z X 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 3149 (in Chinese) 陈 钢、冯 鉴、潘佰良、姚志欣 2005 物理学报 **54** 3149]

[5] Jin Y , Pan B L , Chen G *et al* 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 1799 (in Chinese) 金 毅、潘佰良、陈 钢等 2004 物理学报 **53** 1799]

[6] Holstein T 1951 *Phys. Rev.* **83** 1159

[7] Vuchkov N K , Temlkov K A , Zahariev P V , Sabotinov N V 2001 *IEEE J. Quant. Electron.* **37** 1538

[8] Mao B N , Pan B L , Chen G , Xia T T 2006 *Acta Phys. Sin.* **55** 1793 (in Chinese) 毛邦宁、潘佰良、陈 钢、夏婷婷 2006 物理学报 **55** 1793]

[9] Milne E A 1926 *J. London Math. Soc.* **1** 40

[10] Carman R J , Brown D J W , Piper J A 1994 *IEEE J. Quant. Electron.* **30** 1876

[11] Astadjov D N , Vuchkov N K , Sabotinov N V 1988 *IEEE J. Quant. Electron.* **24** 1927

[12] Carman R J 1990 *IEEE J. Quant. Electron.* **26** 1588

[13] Smithells C J 1976 *Metal Reference Book* (London , Boston : Butterworths) p231

[14] Kuzumaki N , Inoue M , Taniguchi H , Saito H 1989 *Japanese J. Appl. Phys.* **28** 2040

[15] Soldatov A N , Filonov A G , Shumeiko A S , Kirilov A E , Ivanov B L , Haglund R F , Jr. , Mendenhall M H , Gabella W E , Kostadinov I Z 2004 *Proc. SPIE* **5483** 252

[16] Baron K U , Stadler B 1975 *IEEE J Quant. Electron.* **11** 852

[17] Markova S V , Petrash G G 1984 *Proc. SPIE* **2619** 89

[18] Kunemeyer R , McLucas C W , Brown D J W , McIntosh A 1987 *IEEE J. Quant. Electron.* **QE-23** 2028

[19] Carman R J 1990 *IEEE J. Quant. Electron.* **26** 1588

[20] Mildren R P , Brown D J W , Piper J A 1997 *IEEE J. Quant. Electron.* **33** 1717

Resonance radiation trapping in Ca , Sr , Ba and Hg ion lasers^{*}

Mao Bang-Ning Pan Bai-Liang[†] Chen Li Wang Yu-Bo Wang Li-Min

(*Department of Physics , Zhejiang University , Hangzhou 310027 , China*)

(Received 5 December 2006 ; revised manuscript received 3 February 2007)

Abstract

According to Holstein 's theory about radiation trapping effect , the influence of gas temperature and ground-state population density on the effective lifetime of the resonance level is discussed. The results show that the ground-state population density is the dominating factor in the radiation trapping effect. The threshold parameters of radiatoin trapping have been calculated for seven resonance metastable transition laser lines in Ca^+ , Sr^+ , Ba^+ and Hg^+ in different ionization ratios. The threshold temperature of radiation trapping was found to be consistent with the initial lasing temperature for the ionization ratio of 5% , which matches the ionization ratio of 3% to 5% observed in experiment. This consistency reveals that the threshold condition of radiation trapping effect is an important factor for population inversion in lastrs based on the ionic resonance to metastable transition.

Keywords : radiation trapping , ionic resonance to metastable transition laser , threshold temperature

PACC : 4255H , 5170

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China(Grant Nos. 10574111 , 10374081) and the National High Technology Development Program of China(Grant No. 2004AA84TS04).

[†] Corresponding author. E-mail : pbl66@zju.edu.cn