

# He/Ar/Kr 光泵稀有气体激光介质中的 Ar-Kr 共振能量转移

沈元毅 雷鹏 王新兵 左都罗†

(华中科技大学, 武汉光电国家研究中心, 武汉 430074)

(2023 年 6 月 8 日收到; 2023 年 7 月 31 日收到修改稿)

高亚稳态原子数密度是光抽运稀有气体激光器的研究重点之一. 考虑到 Ar 亚稳态能级与 Kr 激发态  $5p[3/2]_2$  能量仅相差  $20\text{ cm}^{-1}$ , 在 He/Kr 放电体系中加入氩气, 有望通过能量共振转移达到补充 Kr 亚稳态原子 ( $\text{Kr}^*$ ) 密度的目的. 本文从光谱诊断及亚稳态原子密度激光吸收光谱测量两个角度进行实验分析, 结果表明: 在 100 mbar ( $1\text{ bar} = 10^5\text{ Pa}$ ), 1% Kr, 12.5% Ar 气体条件下,  $\text{Kr}(5p[3/2]_2)$  向亚稳态能级跃迁辐射谱线峰值最高可增强约 10 倍, 该跃迁谱线尾部信号从  $0.6\text{ }\mu\text{s}$  延长至  $14.25\text{ }\mu\text{s}$ . 实验同时测量了不同 Ar 含量下  $\text{Kr}^*$  密度. 在 100 mbar, 1% Kr 气体条件下加入 15% Ar,  $\text{Kr}^*$  密度从  $4.94 \times 10^{11}\text{ cm}^{-3}$  提升至  $6.96 \times 10^{12}\text{ cm}^{-3}$ . 在气压 600 mbar, 1% Kr/He 混合气体中加入 5% Ar,  $\text{Kr}^*$  峰值密度从  $4.69 \times 10^{13}\text{ cm}^{-3}$  提升至  $5.79 \times 10^{13}\text{ cm}^{-3}$ . 这些结果说明, Ar-Kr 的共振能量转移能有效提高  $\text{Kr}^*$  密度, 有利于光抽运  $\text{Kr}^*$  激光器的高效运行.

**关键词:** 光泵稀有气体激光器, 激光吸收光谱法, 碰撞能量共振转移, 光谱诊断

**PACS:** 52.20.Hv, 52.25.Tx, 51.50.+v

**DOI:** 10.7498/aps.72.20230956

## 1 引言

高能激光器一直是激光领域研究重点之一. 2003 年, 半导体泵浦碱金属蒸气激光器 (diode-pumped alkali vapor lasers, DPAL) 的提出受到了额外关注<sup>[1-3]</sup>. DPAL 具有量子效率高、介质可循环使用的优点, 是气体激光一个新的研究热点<sup>[4]</sup>. 2012 年, Han 和 Heaven<sup>[5]</sup> 提出了光泵亚稳态稀有气体激光器 (optically-pumped metastable rare gas laser, OPRGL) 概念. OPRGL 利用稀有气体亚稳态原子作为增益介质实现激光输出, 能级结构与 DPAL 类似, 同样具有高功率激光输出的潜能, 并且从本质上克服了 DPAL 增益介质需要高温加热保持气态和化学性质活泼的缺陷.

OPRGL 高效运行的一个重要条件是大气压条件下产生一定水平的亚稳态原子数密度, 这直接

关系到系统的光增益以及对泵浦光的吸收<sup>[5]</sup>. 现阶段 OPRGL 所需的亚稳态稀有气体原子通常由放电产生, 目前应用较多的放电方式主要有微等离子体放电、射频容性放电、介质阻挡放电以及高频脉冲直流平行平板放电等方式. 2019 年 Kim 和 Hopwood<sup>[6]</sup> 在  $11.6\text{ cm} \times 3.2\text{ cm} \times 0.8\text{ cm}$  体积下利用微波放电实现了  $10^{12}\text{ cm}^{-3}$  的亚稳态原子制备, 但等离子体有效激光体积远小于放电区域的总体积. 虽然微波放电已经被研究证实能够产生足够的亚稳态原子用以实现 OPRGL 的激光输出, 但是由于其增益体积太小而难以适用于高功率 OPRGL 系统, 增大放电体积会对电源的要求进一步提高, 否则难以产生能均匀充满放电区域内的高密度等离子体. 2015 年, Mikheyev 等<sup>[7,8]</sup> 在 40 MHz 射频容性放电下实现了 Ar/He 混合气体的稳定放电, 在长 10 cm、内径 1.6 cm 的玻璃管内充入流动 Ar/He 混合气, 获得了最高  $2 \times 10^{11}\text{ cm}^{-3}$  量级的

† 通信作者. E-mail: zuoduluo@hust.edu.cn

亚稳态氩原子. 随后在 2016 年采用同样的放电方式制备了 Kr 亚稳态原子<sup>[9]</sup>, 并测量了 Kr 亚稳态能级的吸收线宽. 这一放电方式可以在较大体积下实现亚稳态原子的制备, 并且已经实现了在射频容性放电方式下的连续激光输出<sup>[10]</sup>, 但由于射频容性放电的约化场强较低, 通常难以产生较高密度的亚稳态原子, 更高功率的激光输出也因此受阻. 为探究产生高亚稳态密度等离子体的放电激励方式, Mikheyev 等<sup>[11]</sup> 在 2017 年展示了介质阻挡放电产生亚稳态原子数密度的可行性, 绝缘介质层的引入, 使得这一放电方式实现了较高的击穿电压并在放电正柱区获得了较高的约化场强, 更有利于高亚稳态原子数密度的制备. 但要实现大体积放电, 这一放电方式对电源的要求更高. 现有的研究中, 多以高重复率高压直流脉冲平行平板放电研究为主<sup>[12-14]</sup>. 2021 年, Chu 等<sup>[13]</sup> 采用平行平板放电方式生成 Kr 亚稳态原子 ( $\text{Kr}^*$ ), 并通过吸收光谱法测得  $\text{Kr}^*$  密度为  $1.3 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ . 2022 年 Zhang 等<sup>[14]</sup> 采用分区脉冲放电技术, 进一步扩大放电体积, 在  $2 \times 0.4 \text{ cm}^3$  放电区域内产生了  $10^{13} \text{ cm}^{-3}$  量级的亚稳态氩原子. 该方法为实现大体积、高粒子数密度的放电方式提供了的思路, 但随着分区数的增大, 对放电电源和放电区域内沉积能量的要求同样随之增长. 射频容性放电方式虽然能在较大体积下制

备亚稳态原子, 但受限于约化场强, 难以获得较高水平的亚稳态原子密度. 介质阻挡放电虽能产生较高的约化场强, 但是在进一步扩大体积后发现等离子体在放电区域内分布不均<sup>[11]</sup>, 激光有效增益区域较小而不满足高功率激光的输出条件. 因此, 获得高密度的亚稳态原子以及实现大体积均匀放电仍是 OPRGL 现存的研究难点.

共振能量转移在气体激光的粒子数反转建立过程中发挥重要的作用, Chu 等<sup>[15]</sup> 利用 Kr-Xe 之间的能量共振转移, 在  $\text{Xe}(5d[1/2]_1)$  与  $\text{Xe}(6p[1/2]_1)$  能级间实现粒子数反转并得到自发辐射放大. 受此启发, 本文提出一种对亚稳态原子补充的新方法, 利用惰性气体原子之间的共振能量转移, 实现对亚稳态原子的补充目的. 这一方法可以减轻单纯通过放电激励产生亚稳态原子对电源的要求, 在相同的放电装置下可获得更高的亚稳态原子数密度, 即具有更高的激光增益, 为实现大体积放电和高功率激光输出提供了新思路.

## 2 实验原理及装置

图 1 为实验所涉及到的主要能级示意图, 能级采用 Racah 符号标记, 能级能量以波数为单位. 图 1 简要阐述了 OPRGL 体系的激光能级以及 Ar-Kr 能级碰撞原理.

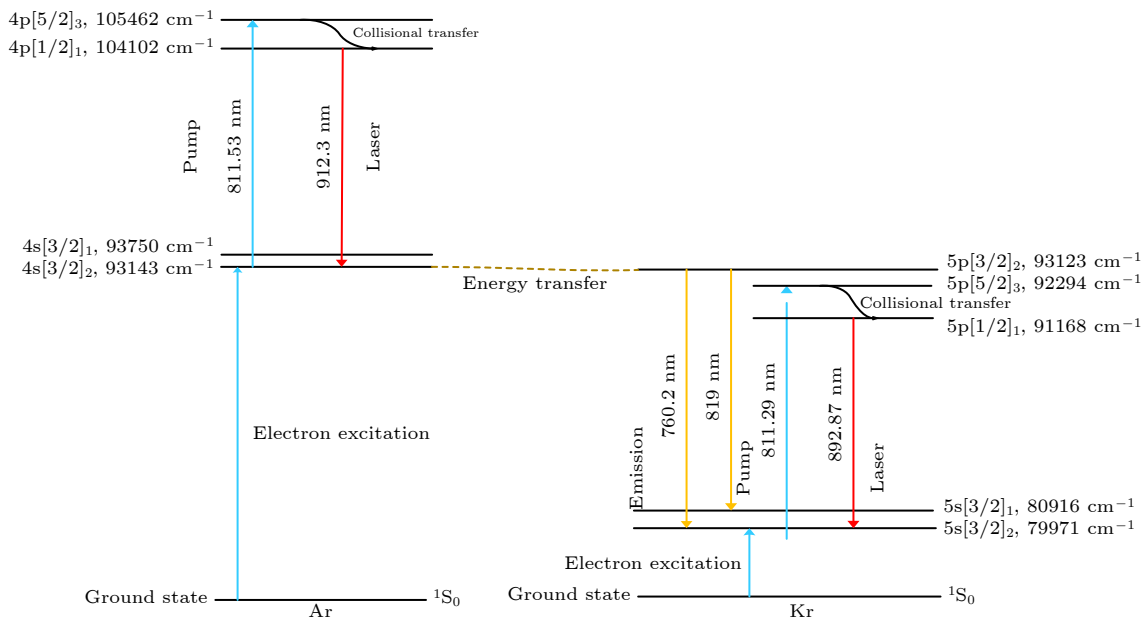
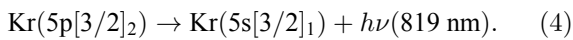
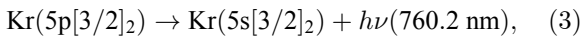
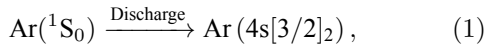


图 1 Ar-Kr 原子能级以及碰撞传能示意图,  $\text{Ar}(4s[3/2]_2)$  能级与  $\text{Kr}(5p[3/2]_2)$  能级能量差仅为  $20 \text{ cm}^{-1}$

Fig. 1. Schematic diagram of Ar-Kr atomic energy levels and collision energy transfer, and the energy difference between  $\text{Ar}(4s[3/2]_2)$  energy and  $\text{Kr}(5p[3/2]_2)$  energy is only  $20 \text{ cm}^{-1}$ .

OPRGL 体系在气体放电的条件下, 部分惰性气体基态原子通过碰撞过程被激发到亚稳态  $ns[3/2]_2$ , 通过光泵浦的方式将亚稳态原子抽运至  $np[5/2]_3$  能级, 该能级粒子与缓冲气体碰撞快速弛豫至激光上能级 ( $np[1/2]_1$  能级), 并在  $np[1/2]_1$  和  $ns[3/2]_2$  能级间形成粒子数反转实现激光振荡 (主量子数  $n$  随惰性气体元素的不同而变换). 现阶段多以 Ar/He 或 Kr/He 两气体体系研究为主体<sup>[16,17]</sup>, 每个放电周期内出射激光强度取决于亚稳态原子数密度<sup>[18,19]</sup>, 激光功率随着亚稳态原子的减少而降低, 因此在 OPRGL 中, 亚稳态原子数密度是决定出射激光功率的关键因素. 查阅美国国家标准与技术研究所 (NIST) 的数据库<sup>[20]</sup>, 不同惰性气体原子之间存在一些能量差很小的共振能级, Ar 亚稳态能级  $4s[3/2]_2$  与 Kr 的激发上能级  $5p[3/2]_2$  能量相近, 两能级能量差仅为  $20 \text{ cm}^{-1}$ . 同时, Kr( $5p[3/2]_2$ ) 能级向下跃迁所有路径中, 主要以 Kr( $5p[3/2]_2$ ) $\rightarrow$ Kr( $5s[3/2]_2$ )(760.2 nm), Kr( $5p[3/2]_2$ ) $\rightarrow$ Kr( $5s[3/2]_1$ )(819.0 nm) 为主, 两路径自发辐射速率分别为  $2.73 \times 10^7 \text{ s}^{-1}$  和  $8.94 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$ . 在原有的 Kr/He 气体体系中加入氩气, 由于 Ar 亚稳态原子寿命较长, 通过 Ar( $4s[3/2]_2$ ) $\rightarrow$ Kr( $5p[3/2]_2$ ) 的碰撞共振能量转移过程, 可以实现补充提高 Kr 亚稳态原子数密度的目的. Ar-Kr 碰撞传能现象的动力学过程可以描述为



由 (3) 式和 (4) 式可得, 在改变气体组分后, 对 760.2 nm 和 819 nm 自发辐射光谱进行诊断, 可对 Ar-Kr 传能过程进行评估. 由于  $\text{Kr}^*$  对激光抽运跃迁线 (811.29 nm) 吸收较大, 在利用吸收光谱法测量粒子数密度时会导致吸收完全而造成较大的计算误差, 因此选用吸收系数较小的跃迁谱线 (810.44 nm, Kr( $5s[3/2]_2$ ) $\rightarrow$ Kr( $5p[5/2]_2$ )) 对  $\text{Kr}^*$  密度测量. 通过光谱诊断和粒子数密度测量验证 Ar-Kr 碰撞能量转移加强对 Kr 亚稳态原子生成的特性.

实验装置及粒子数密度测量光路如图 2 所示. 放电装置采用之前工作中<sup>[14]</sup> 分段结构设计, 共两个

放电区域, 每个放电区域的体积为  $2.5 \text{ cm} \times 0.8 \text{ cm} \times 0.2 \text{ cm}$  ( $L \times W \times H$ ). 放电方式为高重复率直流脉冲平行平板放电, 上电极接地, 自制的 LC 振荡电路在 750 V 的充电电压下可输出峰值约 1300 V 的高压脉冲, 直流脉冲源通过同轴电缆与下电极相连, 采用 MOSFET 和数字延迟脉冲触发器 (DG535, Stanford Research Systems) 控制放电频率并设置为 10 kHz. 腔室真空系统由涡轮真空泵 (Scrollvac SC 5D, Leybold Vacuum) 和分子泵 (Turbovac SL 300, Leybold Vacuum) 组成, 可将腔内气压抽运至  $10^{-6}$  mbar 量级. 高纯惰性气体 (纯度 99.999%) 通过质量流量计控制流速, 防止充气过快而导致等离子体猝灭. 腔室内的工作气压通过薄膜规 (CDG025D, Inficon) 进行监测, 实验气压变化范围为 100—600 mbar, Kr:He 比例为 1:99.

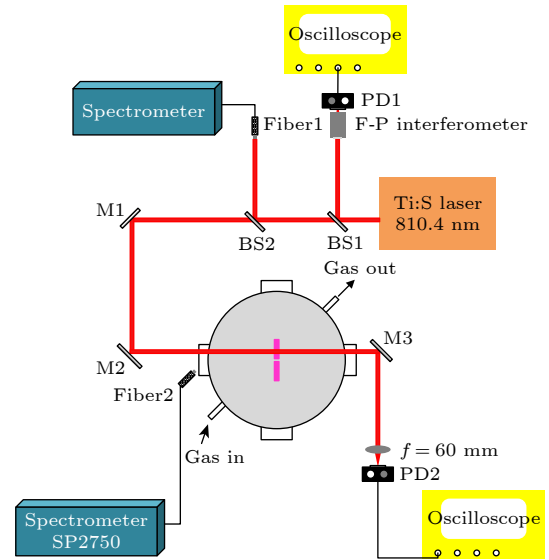


图 2 放电装置及探测光路图

Fig. 2. Discharge device and detection optical path diagram.

实验使用商用的钛宝石激光器 (Matisse, Spectra-Physics) 作为探测光源, 该激光器谱线宽度远低于大气压下氩亚稳态能级原子 ( $\text{Kr}^*$ ) 的吸收线宽, 可以准确反映出一个放电周期内亚稳态原子对探测光的吸收情况. 通过改变 Matisse 激光器谐振腔腔长实现探测光的调谐扫频, 在一个调谐周期内, 探测光束经分束镜 (BS1, BS2) 进行分束, BS1 将一部分探测光引导至自由光谱范围为 10 GHz 的法布里-珀罗干涉仪中, 结合光电二极管 PD1 (DET36A, Thorlabs) 获得调谐扫频过程中的频率标尺, 根据探测信号离透过峰的时间间隔可以准

确获得此时探测光的频率. 经 BS2 分束的探测光经光纤探头 Fiber1 接收后进入高分辨率光谱仪 (THR1500, Jobin Yvon) 中用于探测光波长的监视与校准. 透过等离子体的探测光经 M3 反射延长光路以减弱放电荧光对探测结果的影响, 再利用透镜聚焦以确保探测光束能被 PD2 (DET100A, Thorlabs) 完全收集, 示波器连接 DG535 与气体放电同步触发, 探测信号采样频率设置为 1 Hz. 光纤探头 Fiber2 连接光谱仪 (SP2750, Princeton Instrument) 用于等离子体光谱诊断.

### 3 实验结果及讨论

#### 3.1 等离子体发射光谱诊断

根据碰撞反应 (1)–(4) 描述的动力学过程, 可利用  $\text{Kr}(5p[3/2]_2) \rightarrow \text{Kr}(5s[3/2]_2)$  (760.2 nm)、 $\text{Kr}(5p[3/2]_2) \rightarrow \text{Kr}(5s[3/2]_1)$  (819.0 nm) 两条发射谱线进行共振能量转移效果的诊断. 放电等离子体辉光经光纤收集导入光谱仪进行分析, 760.2 nm 原始光谱图及不同气压不同氩含量的谱线峰值比对结果如图 3 所示 (发射光谱图已校正 PIXIS 相机带来的强度偏置). 结果显示, 在低压下 (100–250 mbar), 由于  $\text{Ar}(4s[3/2]_2)$  和  $\text{Kr}(5p[3/2]_2)$  之间的碰撞传能, 导致  $\text{Kr}(5p[3/2]_2)$  能级原子数在放电周期内得到大量补充并向下跃迁, 760.2 nm 谱线得到明显增强. 在 100 mbar, 1% Kr, 12.5% Ar 的气体组分条件下, 峰值强度增强可达 1043% (超过 10 倍). 图 3(b) 表明, 随着气压的升高, 使  $\text{Ar}(4s[3/2]_2) \rightarrow \text{Kr}(5p[3/2]_2)$  这一碰撞过程达到饱和所需的氩含量

降低, 同时谱线增强幅度也随气压呈负相关, 当气压升高至 600 mbar 时, 760.2 nm 谱线峰值增强仅有 70%.

为对这一现象规律进行验证, 实验同时测量了  $\text{Kr}(5p[3/2]_2) \rightarrow \text{Kr}(5s[3/2]_1)$  (819.0 nm) 这一路径辐射谱线变化规律. 结果如图 4 所示, 由于 Ar-Kr 间的共振传能, 819 nm 辐射谱线同样得到增强, 同时由图 4(b) 可以看出, 100 mbar 下共振传能效果相较于 200 mbar 更为显著. 在 100 mbar, 1% Kr, 10% Ar 气体条件下, 谱线峰值增强约 776%, 略低于 760.2 nm, 是因为 Kr 跃迁路径  $\text{Kr}(5p[3/2]_2) \rightarrow \text{Kr}(5s[3/2]_2)$  (760.2 nm) 相比路径  $\text{Kr}(5p[3/2]_2) \rightarrow \text{Kr}(5s[3/2]_1)$  (819.0 nm) 的自发辐射系数更大. 通过两条跃迁谱线间的相互对比, 验证了 Ar-Kr 之间的共振传能使得  $\text{Kr}(5p[3/2]_2)$  上的原子布局数得到明显增强, 预计 Kr 亚稳态原子也得到了补充.

为进一步分析每个放电周期内的共振能量转移过程, 测量了不同气压不同氩含量下 760.2 nm 时间分辨的发射谱线 (819 nm 谱线分析过程与结果与 760.2 nm 一致), 测量原始信号及谱线分析结果如图 5 所示.

图 5(a) 为光电倍增管 (photomultiplier tube, PMT) 测得的 760.2 nm 波长辐射的时间分辨波形, 在 100 mbar, 1% Kr 气体组分下, 放电初始时刻信号强度在加入氩之后得到增强, 与荧光发射光谱实验结果一致. 在一个放电周期 (100  $\mu\text{s}$ ) 内, 随着氩含量的升高, 760.2 nm 荧光谱线尾部信号在时域上得到延长. 考虑到噪声的幅值, 定义尾部信号长度为自示波器信号大于 0.1 mV 至信号幅值小

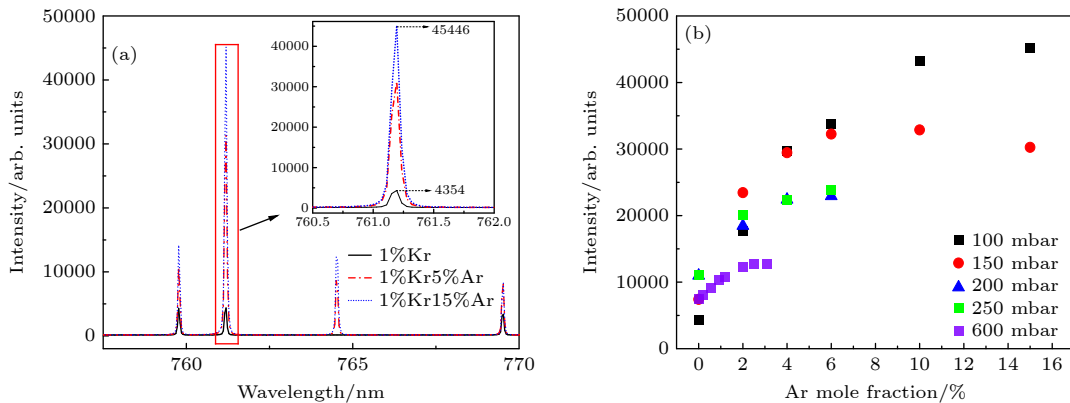


图 3 760.2 nm 光谱诊断结果 (a) 100 mbar, 1% Kr/Ar/He 混合气体不同 Ar 含量的放电等离子体发射光谱; (b) 不同气压 760.2 nm 谱线峰值随 Ar 含量的变化

Fig. 3. Spectral diagnosis results at 760.2 nm: (a) Emission spectra of discharge plasma with different Ar content in 100 mbar, 1% Kr/Ar/He gas mixture; (b) variation of the peak value of 760.2 nm spectral line with Ar content at different pressure.

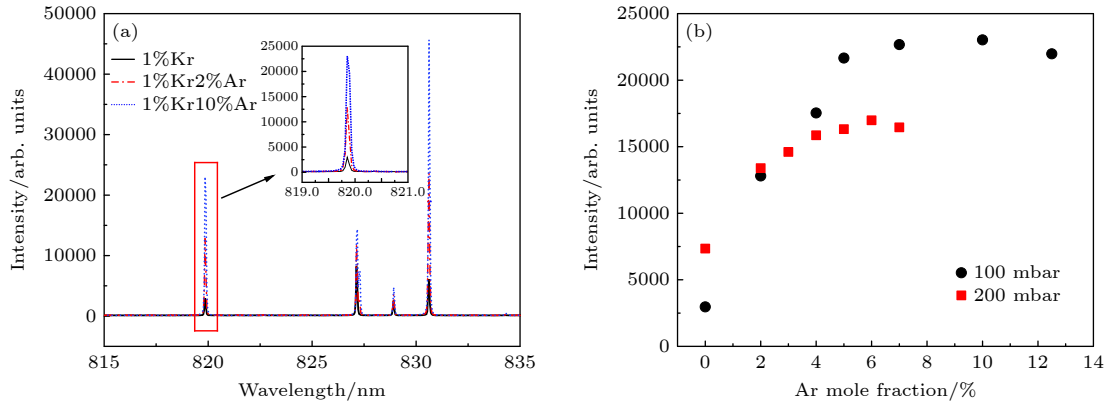


图 4 819.0 nm 光谱诊断结果 (a) 100 mbar, 1% Kr/Ar/He 混合气体不同 Ar 含量的放电等离子体发射光谱; (b) 不同气压 819.0 nm 谱线峰值随 Ar 含量的变化

Fig. 4. Diagnosis Results of 819.0 nm spectra: (a) Emission spectra of discharge plasma with different Ar content in 100 mbar, 1% Kr/Ar/He gas mixture; (b) variation of the peak value of 819.0 nm spectral line with Ar content at different pressure.

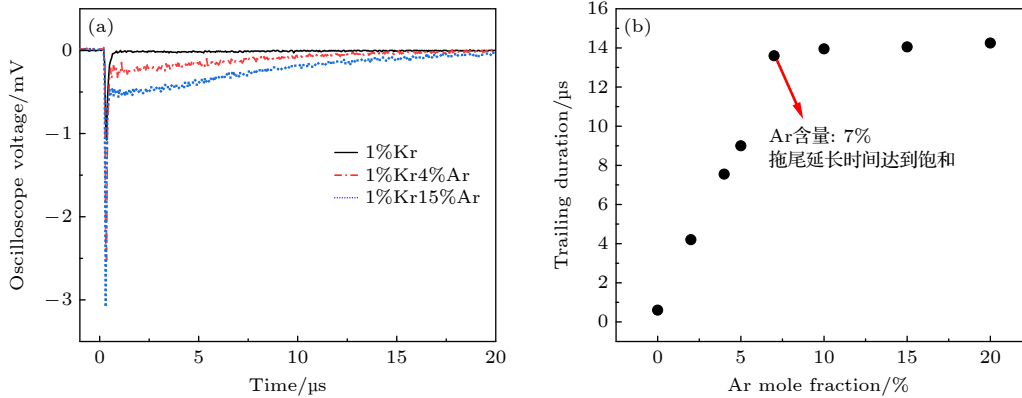


图 5 760.2 nm 时间分辨光谱诊断结果 (a) 100 mbar, 1% Kr 时不同氩含量原始光谱图; (b) 荧光信号强度降至 0.1 mV 所需时间

Fig. 5. Diagnostic results of 760.2 nm time-resolved spectra: (a) Original spectrogram of different argon content at 100 mbar, 1% Kr; (b) time required for fluorescence signal intensity to drop to 0.1 mV.

于 0.1 mV 的时间, 信号尾部长随 Ar 原子摩尔浓度的变化如图 5(b) 所示. 在 100 mbar, 无 Ar 的 1% Kr/He 混合气体条件下, 发射谱线仅延续 1  $\mu$ s 左右, 当 Ar 含量达到 7% 左右时, 尾部信号长度扩展这一现象接近饱和, 此时 760.2 nm 谱线拖尾延续时间可达 14  $\mu$ s. 这一结果表明, Ar 的加入使得在一个放电周期内有更多的 Kr( $5p[3/2]_2$ ) 激发态原子参与向下跃迁这一过程, 相比于未加 Ar 时, Kr 亚稳态原子在 1—14  $\mu$ s 内得到补充. 根据已取得的成果<sup>[21]</sup>, 一个放电周期内, 由于亚稳态原子寿命有限, 出射激光强度在放电后 3  $\mu$ s 左右开始下降, 通过共振传能对亚稳态原子补充有望在时域上延长激光波形从而获得更高功率的输出激光.

在时间分辨发射光谱分析中, 尾部信号在时域上得到延长这一现象达到饱和时所需的氩含量随气压的升高而减小. 在 600 mbar 气压条件下, 由于

噪声的影响, 谱线只能看到微弱的延长, 这一现象随气压变化的规律与图 3 和图 4 实验结果表现一致.

### 3.2 Kr 亚稳态原子数密度

为进一步探究不同气体条件下碰撞能量共振转移对每个放电周期内 Kr\* 粒子数密度的影响, 采用吸收光谱法<sup>[22]</sup>对亚稳态 Kr 粒子数密度进行测量. 探测光路如图 2 所示. 根据比尔-朗伯定律, 当探测光透过均匀的待测气体时, 入射和出射光强对应关系表达式为<sup>[13]</sup>

$$\frac{I_1(\nu)}{I_0(\nu)} = e^{-k(\nu)l}, \quad (5)$$

其中,  $I_0(\nu)$  和  $I_1(\nu)$  分别对应入射等离子体前后的激光光强,  $k(\nu)$  为等离子体的吸收系数, 具体表达式为  $k(\nu) = g_2 A_{21} \lambda^2 N / (g_1 8\pi)$ , 其中  $g_2$  和  $g_1$  为上下两个能级简并度,  $A_{21}$  为吸收上能级至下能级得

自发辐射速率,能级简并度和自发辐射速率具体数值可从 NIST 数据库<sup>[20]</sup>中获取.  $N$  为待测亚稳态原子数密度,  $\lambda$  为探测光中心波长,  $l$  为吸收光程, 在本实验中取值 0.8 cm. 由 (5) 式可推得亚稳态原子数密度表达式为<sup>[23]</sup>

$$N_i = \frac{8\pi\nu_0^2 g_1}{A_{21} c^2 g_2} \cdot \frac{1}{l} S, \quad (6)$$

其中,  $S = \int \ln\left(\frac{I_0(\nu)}{I_1(\nu)}\right) d\nu$ ,  $\nu_0$  为探测光的中心频率.

对调谐过程中采集的吸收信号在频域上进行 Voigt 拟合, 结合所测的频率标尺可获得对应气体条件下亚稳态原子的吸收线宽, 将拟合曲线对频域积分并代入 (6) 式, 可算得 Kr<sup>\*</sup> 粒子数密度. 在 100 mbar, 1% Kr, 4% Ar 气体条件下, 激光器调谐中心波长标定在 810.44 nm, 调谐周期设定为 200s, 示波器的采样频率设定为 1 Hz. 由于和缓冲气体的碰撞以及气压导致的吸收线中心飘移, 在调谐周期内第 100 s 左右时 (此时激光器调谐扫频至中心波长附近) 可明显观察到等离子体对探测光的吸收. 结合 FP 测得的频率标尺, 可获得每一次采集时探测光对中心频率的偏移量, 探测激光偏离中心频率  $\Delta\nu = 8$  GHz 左右时, 等离子体对探测光信号吸收示意图及粒子数密度分析结果如图 6 所示.

图 6(a) 结果显示吸收主要发生在放电零时刻的前 20  $\mu\text{s}$ , 这一结果与稀有气体亚稳态能级平均寿命 (约十几微秒) 对应<sup>[24]</sup>. 加 Ar 之后, 吸收线在峰值处被完全吸收, 这也证明了 Ar 气的加入使 Kr<sup>\*</sup> 密度得到补充, 为排除完全吸收对信号处理的影响, 选取距放电零时刻 2.5  $\mu\text{s}$  处的尾部信号值作为探测光出射强度进行分析, 拟合结果如图 6(b) 所示. 结合 F-P 信号对该拟合曲线积分, 计算得到该时刻放电产生的 Kr<sup>\*</sup> 密度约为  $3.6 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ . 由于选取尾部信号而未选取吸收线峰值信号进行拟合, 因此所算得粒子数密度要低于峰值, 但并不影响不同气体条件之间的相互对比. 改变腔内总气压和气体组分, 测得 Kr<sup>\*</sup> 粒子数密度在不同气体条件下变化趋势如图 7 所示.

图 7(a) 和图 7(b) 结果显示, 在较低气压下 (100—200 mbar), Ar 的加入对 Kr 亚稳态原子数密度有显著提升. 在 100 mbar, 1% Kr 气体条件下, 放电激励产生的 Kr<sup>\*</sup> 粒子数密度为  $4.95 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$ . 在同样的放电方式与气压下, Chu 等<sup>[13]</sup> 利用尾部信号取点得到 He-Kr 气体体系在直流脉冲平行平

板放电下产生的 Kr<sup>\*</sup> 密度为  $1.45 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$ , 与本文实验测量计算值相近, 他们在工作中指出, 亚稳态原子数密度峰值约  $10^{12} \text{ cm}^{-3}$  量级, 该峰值维持时间约 3  $\mu\text{s}$ , 理论上可满足后续激光运行的要求. 本文在 100 mbar, 1% Kr/He 体系中加入 Ar 后, 放电激励产生的 Kr<sup>\*</sup> 密度提升至  $6.96 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ , 由此可见利用共振转移可有效提升 Kr<sup>\*</sup> 密度并有望得到更高功率的激光输出. 随着气压的升高, Kr<sup>\*</sup> 粒子数密度增强现象达到饱和时所需的 Ar 含量降低, 与光谱诊断结果吻合. 同时随着 Ar 含量的提升, Kr 亚稳态能级吸收线宽在低压下呈压窄趋势. 改变腔室内 Kr 含量并进行对比, 结果如图 7(c) 所示, 在低压下提升 Kr 含量对 Kr<sup>\*</sup> 密度有显著提高, 且粒子数密度和线宽所表现出随 Ar 含量变化规律与图 7(a) 和图 7(b) 结果一致. 在高压实验中, 由于 Kr(Ar) 含量增多容易使辉光放电转化为弧光放电, 进而导致放电的不均匀性, 因此进一步升高气压时仅针对 1% Kr 含量进行分析. 进一步加大气压, 不同条件下的 Kr<sup>\*</sup> 密度和 Kr<sup>\*</sup> 密度增长比例变化如图 8 所示.

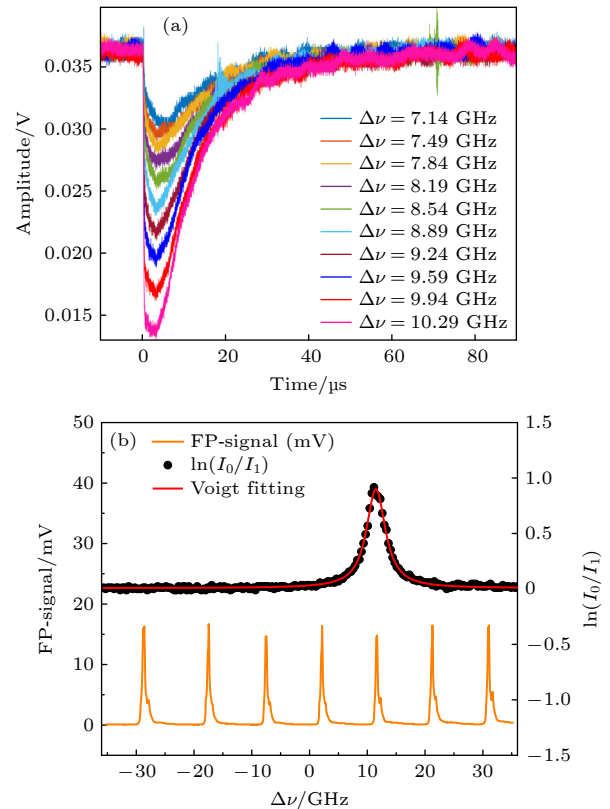


图 6 (a) 100 mbar, 1% Kr, 4% Ar 条件下原始吸收信号; (b) Voigt 拟合结果

Fig. 6. (a) Original absorption signal under condition of 100 mbar, 1% Kr, 4% Ar; (b) Voigt fitting results.

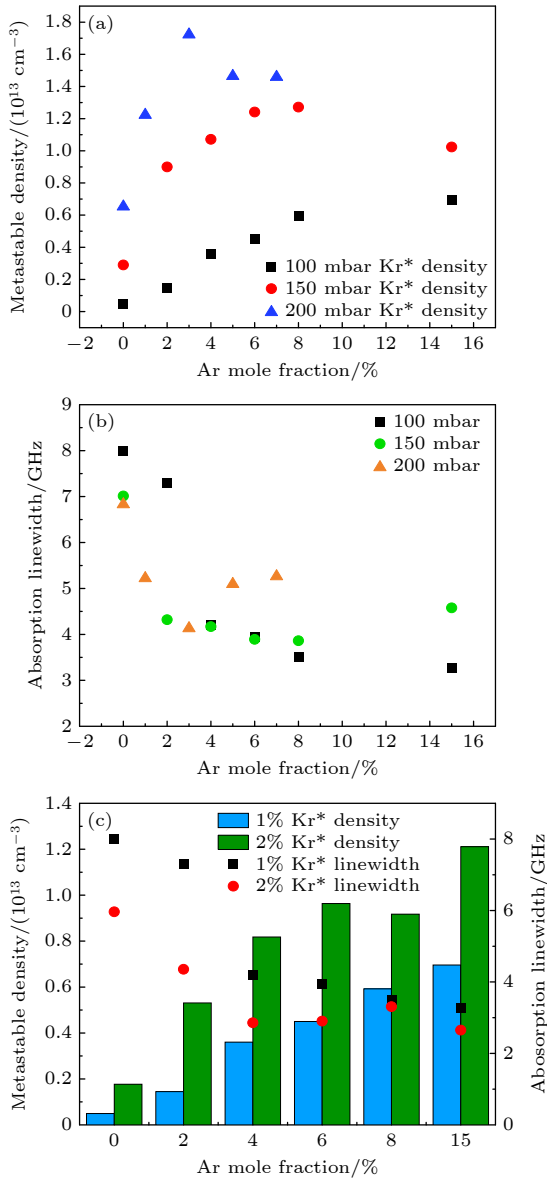


图7 (a) 100—200 mbar, 1% Kr/He 混合气中不同 Ar 含量对 Kr\* 密度影响; (b) 100—200 mbar, 1% Kr/He 混合气中不同 Ar 含量对 Kr 亚稳态能级吸收线宽影响; (c) 100 mbar, 1% Kr 和 2% Kr 含量时, Kr\* 粒子数密度和吸收线宽对比

Fig. 7. (a) Effect of Ar content in 1% Kr/He mixture on Kr\* density at 100—200 mbar; (b) effect of different Ar content in 100—200 mbar, 1% Kr/He mixture on the absorption linewidth of Kr metastable energy level; (c) comparison of Kr\* particle number density and absorption line width at 100 mbar, 1% Kr and 2% Kr content.

相较于 300/400 mbar, 500/600 mbar 下等离子体对探测光吸收完全现象更加明显, 为减小误差, 在 500/600 mbar 气压下分析时选取吸收信号尾部值 (距放电零时刻约 5  $\mu\text{s}$ ) 进行分析. 尾部信号取点计算会导致粒子数密度计算值偏小, 进而导致 Kr\* 密度在加 Ar 前后的增长幅度减小, 但仍可对高压下 Kr\* 密度变化趋势进行分析. 图 8(a) 结果显

示, 腔内总气压升至 400 mbar 时, Ar 的加入对 Kr\* 粒子数密度仍有显著提升效果, 在 400 mbar 下, 使粒子数密度增强达到饱和所需的 Ar 含量约为 3%, 这一数值对比于 300 mbar (Ar, 5%) 呈下降趋势. 同时随着气压进一步提升, 亚稳态原子密度的压力依赖性减弱. 在 500—600 mbar 更高气压下, He/Ar/Kr 体系中 Kr\* 粒子数密度增长幅度随气压升高进一步降低. 图 8(b) 给出了不同气压下亚稳态原子数密度的相对比例变化, 由于气压升高, 布局在不同能级上的原子有更多的碰撞, 气体原子在各个能级上的布局更容易达到热平衡状态, 因此在此高压下原子间碰撞导致能量共振转移过程不如低压下显著. 在 OPRGL 的运行过程中, 抽运将显著减少 Kr(5s[3/2]<sub>2</sub>) 能级上的粒子数布局, 共振能量转移过程, 即使在高压下, 也有可能对激光抽运引起的减少进行补充. 亚稳态原子数密度的补充将直接影响 OPRGL 体系出射激光功率, 改变气体组分通过原子间共振传能可以带来更高的激光增益, 在相同的放电及泵浦条件下有望获得峰值功率更高的激光输出.

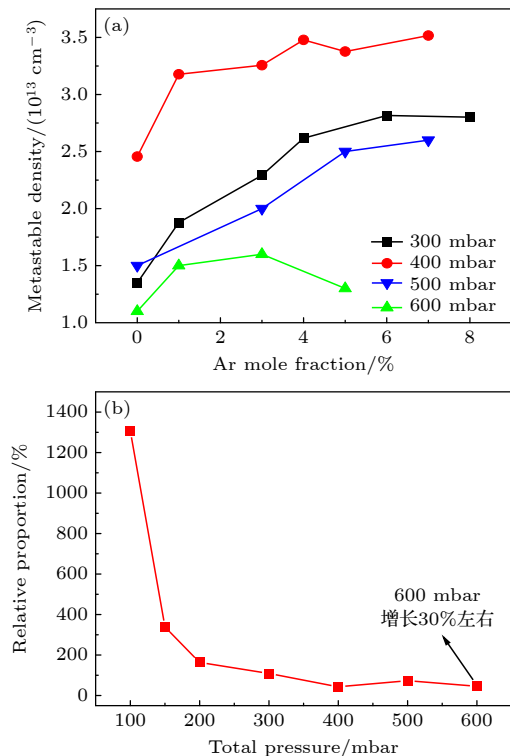


图8 (a) 300—600 mbar 不同 Ar 含量对 1% Kr/He 混合气中 Kr\* 密度影响; (b) 不同气压下 Kr\* 密度增长比例变化

Fig. 8. (a) Effect of different Ar content on Kr\* Density in 1% Kr/He mixture at 300—600 mbar; (b) change in Kr\* density growth ratio under different air pressures.

## 4 结 论

针对现有 OPRGL 放电气体体系, 本文探索了对亚稳态原子数密度进行补充的新思路, 通过原子间的能量共振转移和高能级粒子向下弛豫达到在放电激励基础上对亚稳态原子再补充的目的, 从而使 OPRGL 激光体系能够在一个放电周期内获得更高的增益. 通过光谱诊断验证了共振传能的动力学过程, 在 100 mbar, 1% Kr, 12.5% Ar 气体条件下, 表征  $\text{Kr}(5p[3/2]_2) \rightarrow \text{Kr}(5s[3/2]_2)$  (760.2 nm) 这一跃迁过程的辐射谱线强度增强约 10 倍. 同时从时间分辨光谱角度上分析, 760.2 nm 谱线强度因 Ar 的加入在时域上得到延长. 根据我们之前的工作<sup>[21]</sup>, 若泵浦光足够强, 出射激光波形及强度与粒子数密度呈正相关, 根据光谱这一结论有望能在时域上对出射激光波形进行延长, 从而提高出射激光的平均功率. 进一步通过吸收光谱法测量了 100—600 mbar 下  $\text{Kr}^*$  粒子数密度, 对比了不同气体条件下加 Ar 前后  $\text{Kr}^*$  密度的增长趋势, 在 100 mbar 下粒子数密度提升效果最为显著,  $\text{Kr}^*$  密度从  $4.94 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$  提升至  $6.96 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ . 研究过程中同时发现, 气压升高将使得共振传能现象减弱, 高压下  $\text{Kr}^*$  密度增长幅度不如低气压时显著, 这预计与原子碰撞引起的快速弛豫有关. 实验从光谱诊断和粒子数密度两个方面验证了共振传能对亚稳态原子数密度的补充作用, 有可能通过该方法有望在同放电及泵浦条件下获得更高功率的激光输出.

## 参考文献

- [1] Qi Y, Yi H Y, Huang J J, Kuang Y 2021 *Laser Optoelectron. P.* **58** 0700003
- [2] Krupke W F 2012 *Prog. Quantum Electron.* **36** 4
- [3] Pitz G A, Stalnaker D M, Guild E M, Oliner B Q, Moran P J, Townsend S W, Hostutler D A 2016 *High Energy/Average Power Lasers and Intense Beam Applications IX* San Francisco, CA, February 15–16, 2016 972902
- [4] Qi Y, Yi H Y, Huang J J, Kuang Y 2021 *Laser Optoelectron P.* **58** 46 (in Chinese) [齐予, 易亨瑜, 黄吉金, 匡艳 2021 激光与光电子学进展 **58** 46]
- [5] Han J D, Heaven M C 2012 *Opt. Lett.* **37** 2157
- [6] Kim H, Hopwood J 2019 *J. Appl. Phys.* **126** 163301
- [7] Mikheyev P A, Chernyshov A K, Ufimtsev N I, Vorontsova E A, Azyazov V N 2015 *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf.* **164** 1
- [8] Mikheyev P A, Chernyshov A K, Ufimtsev N I, Vorontsova E A 2015 *Tunable Diode-laser Spectroscopy (TDLS) of 811.5 nm Ar Line for Ar(4s[3/2]2) Number Density Measurements in a 40 MHz RF Discharge* (Vol. 9255) (SPIE) 92552W
- [9] Mikheyev P A, Chernyshov A K, Ufimtsev N I, Ghildina A R, Azyazov V N, Heaven M C 2016 *High Energy/Average Power Lasers and Intense Beam Applications IX* San Francisco, CA, February 15–16, 2016 97290E
- [10] Gao J, Zuo D L, Zhao J, Li B, Yu A L, Wang X B 2016 *Opt. Laser Technol.* **84** 48
- [11] Mikheyev P A, Han J D, Clark A, Sanderson C, Heaven M C 2017 *Production of Ar Metastables in A Dielectric Barrier Discharge* (Vol. 10254) (SPIE) 102540X
- [12] Han J D, Glebov L, Venus G, Heaven M C 2013 *Opt. Lett.* **38** 5458
- [13] Chu J Z, Huang K, Luan K P, Hu S, Zhu F, Huang C, Li G P, Liu J B, Guo J W, Liu D 2021 *Chin. J. Lasers* **48** 0701006
- [14] Zhang Z F, Lei P, Zuo D L, Wang X B 2022 *Chin. Opt. Lett.* **20** 031408
- [15] Chu J Z, Huang K, Gai B D, Hu S, Liu J B, Chen Y, Liu D, Guo J W 2022 *J. Lumines.* **247** 118839
- [16] Wang R, Yang Z N, Tang H, Li L, Zhao H Z, Wang H Y, Xu X J 2022 *Opt. Commun.* **502** 127398
- [17] Ghildina A R, Mikheyev P A, Chernyshov A K, Ufimtsev N I, Azyazov V N, Heaven M C 2017 *Pressure Broadening Coefficients for the 811.5 nm Ar Line and 811.3 nm Kr Line in Rare Gases* (Vol. 10254) (SPIE) 102540Y
- [18] Han J, Heaven M C, Moran P J, Pitz G A, Guild E M, Sanderson C R, Hokr B 2017 *Opt. Lett.* **42** 4627
- [19] Wang R, Yang Z N, Li K, Wang H Y, Xu X J 2022 *J. Appl. Phys.* **131** 023104
- [20] Kramida A, Ralchenko Y, Reader J, NIST ASD Team (2022) <https://physics.nist.gov/asd/> [2023-6-8]
- [21] Lei P, Zhang Z F, Wang X B, Zuo D L 2022 *Opt. Commun.* **513** 128116
- [22] Belostotskiy S G, Donnelly V M, Economou D J, Sadeghi N 2009 *IEEE Trans. Plasma Sci.* **37** 852
- [23] Miura N, Hopwood J 2011 *J. Appl. Phys.* **109** 013304
- [24] Sun P, Zuo D, Wang X, Han J D, Heaven M C 2020 *Opt. Express* **28** 14580

# Ar-Kr resonance energy transfer in He/Ar/Kr optically pumped rare gas laser medium

Shen Yuan-Yi   Lei Peng   Wang Xin-Bing   Zuo Du-Luo<sup>†</sup>

(Wuhan National Laboratory for Optoelectronics, Huazhong University of Science and Technology, Wuhan 430074, China)

( Received 8 June 2023; revised manuscript received 31 July 2023 )

## Abstract

High metastable density is one of the research hotspots of optically pumped rare gas laser (OPRGL). Considering that the Ar metastable state energy level is only  $20\text{ cm}^{-1}$  different from the Kr excited state  $5p[3/2]_2$ , argon gas is added to the He/Kr discharge system. Owing to the long lifetime of the Ar metastable state atoms, through the collision resonance energy transfer process of  $\text{Ar}(4s[3/2]_2) \rightarrow \text{Kr}(5p[3/2]_2)$ , the purpose of supplementing and increasing the metastable density of Kr ( $\text{Kr}^*$ ) can be realized. In the case of obtaining the same metastable density, the pressure of the discharge power source is reduced, and a new idea is provided for further obtaining a high metastable density in a large discharge volume. In this work, the experimental analysis is carried out from the perspectives of spectral diagnosis and measurement of metastable density by laser absorption spectroscopy. The results show that the peak of radiative transition line of Kr high energy level atoms participating in the collision to the metastable state energy level is significantly enhanced after adding argon, and the tail signal of the transition line is extended within one discharge cycle. Under the gas conditions of 100 mbar, 1% Kr and 12.5% Ar, the peak value of the spectral line can be enhanced by about 10 times, and the tail signal of the transition line can be extended from  $0.6\ \mu\text{s}$  to  $14.25\ \mu\text{s}$ . At the same time, the density of Kr metastable energy level atoms is measured under different Ar content. Under the gas conditions of 100 mbar, 15% Ar and 1% Kr, the density of  $\text{Kr}^*$  increases from  $4.94 \times 10^{11}\text{ cm}^{-3}$  to  $6.96 \times 10^{12}\text{ cm}^{-3}$ . At low pressure, the absorption linewidth of Kr metastable atoms narrows with the increase of Ar content. Under the gas condition of 600 mbar and 1% Kr, when the content of Ar is increased to 5%, the peak density of  $\text{Kr}^*$  increases from  $4.69 \times 10^{13}\text{ cm}^{-3}$  to  $5.79 \times 10^{13}\text{ cm}^{-3}$ , i.e. the increment is 20%. Although the enhancement of metastable-atom-generation at high pressure is not so significant as those at low pressure, an increasing trend can still be observed. The results verify that the Kr metastable atoms generated in each discharge period can be supplemented by Ar-Kr resonance energy transfer.

**Keywords:** optically pumped rare gas lasers, laser absorption spectroscopy, collision energy resonance transfer, spectral Diagnostics

**PACS:** 52.20.Hv, 52.25.Tx, 51.50.+v

**DOI:** 10.7498/aps.72.20230956

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail: [zuoduluo@hust.edu.cn](mailto:zuoduluo@hust.edu.cn)

He/Ar/Kr光泵稀有气体激光介质中的Ar-Kr共振能量转移

沈元毅 雷鹏 王新兵 左都罗

**Ar-Kr resonance energy transfer in He/Ar/Kr optically pumped rare gas laser medium**

Shen Yuan-Yi Lei Peng Wang Xin-Bing Zuo Du-Luo

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 72, 195201 (2023) DOI: 10.7498/aps.72.20230956

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.72.20230956>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

## 您可能感兴趣的其他文章

### Articles you may be interested in

基于Tikhonov正则化参数矩阵的激光吸收光谱燃烧场二维重建光路设计方法

Development of beam arrangement design for tunable diode laser absorption tomography reconstruction based on Tikhonov regularization parameter matrix

物理学报. 2020, 69(22): 227801 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20201144>

聚二甲基硅氧烷微流体中光流控荧光共振能量转移激光

Optofluidic fluorescence resonance energy transfer lasing in a polydimethylsiloxane microfluidic channel

物理学报. 2019, 68(5): 054203 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20181696>

2.0  $\mu\text{m}$ 附近模拟呼吸气体中 $^{13}\text{CO}_2/^{12}\text{CO}_2$ 同位素丰度的高精度实时在线测量

Highly precise and real-time measurements of  $^{13}\text{CO}_2/^{12}\text{CO}_2$  isotopic ratio in breath using a 2  $\mu\text{m}$  diode laser

物理学报. 2018, 67(6): 064206 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20171861>

基于可调谐激光吸收光谱技术的二硫化碳中红外光谱参数测量

Measurement of middle infrared spectroscopic parameters of carbon disulfide based on tunable diode laser absorption spectroscopy

物理学报. 2019, 68(8): 084204 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20182140>

4296—4302  $\text{cm}^{-1}$ 范围内氨气光谱线强与自展宽系数测量研究

Measurement research of line intensity and self-broadening coefficient for  $\text{NH}_3$  spectra in 42964302  $\text{cm}^{-1}$

物理学报. 2022, 71(16): 164204 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220504>

等离子共振能量转移与增强光催化研究进展

Plasmon resonance energy transfer and research progress in plasmon-enhanced photocatalysis

物理学报. 2019, 68(14): 147301 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190276>