

铷蒸气激光器中的碰撞能量转移效应

葛 伦^{1,2}, 华卫红¹, 王红岩¹, 杨子宁¹, 韩海涛¹

(1. 国防科学技术大学 光电科学与工程学院, 湖南 长沙 410073;

2. 中国人民解放军 61773 部队, 新疆 乌鲁木齐 830002)

摘 要: 为研究高泵浦强度下铷蒸气激光器中的碰撞能量转移效应, 建立了考虑碰撞能量转移的铷蒸气激光器速率方程模型。通过计算得到高泵浦强度下(10 kW/cm²), 碰撞能量转移不会显著影响激光发射速率。碰撞能量转移强弱与激发态粒子数密度和对应温度下的速率常数有关。随着泵浦强度和激发态粒子数密度提高, 碰撞能量转移会减小激光发射速率。但是, 在较低泵浦强度、较低粒子数密度条件下, 碰撞能量转移对自发辐射的抑制效果更为显著, 反而会促使激光发射速率增加。

关键词: 铷蒸气激光器; 碰撞能量转移; 相速率方程; 相激光发射速率

中图分类号: TN248 **文献标志码:** A **文章编号:** 1007-2276(2013)02-0334-05

Energy Pooling process in rubidium vapor laser

Ge Lun^{1,2}, Hua Weihong¹, Wang Hongyan¹, Yang Zining¹, Han Haitao¹

(1. College of Opto-Electronic Science and Engineering, National University of Defense Technology, Changsha 410073, China;

2. 61773 PLA, Urumchi 830002, China)

Abstract: In order to study the Energy Pooling process of the rubidium vapor laser, this paper established a rate equation model which took Energy Pooling effect into consideration. Through calculating it was found that when the magnitude of the pump intensity was, the influence of Energy Pooling process on laser photon emission rate was not remarkable. The influencing degree was related to the excited population density and the rate coefficient. With the increasing of pump intensity and excited population density, the Energy Pooling process reduced laser photon emission rate. However, under the conditions of lower pump intensity and lower excited population density, Energy Pooling significantly reduced the spontaneous radiation so that the laser photon emission rate was increased.

Key words: rubidium vapor laser; Energy Pooling; rate equation; laser photon emission rate

收稿日期: 2012-06-17; 修订日期: 2012-07-15

基金项目: 国防预研基金

作者简介: 葛伦(1986-), 男, 硕士生, 主要从事碱金属蒸气激光器方面的研究。Email: gelun86@yahoo.cn

导师简介: 华卫红(1968-), 女, 教授, 博士生导师, 主要从事化学激光器方面的研究。

Email: rosehua@hotmail.com

0 引 言

半导体泵浦的碱金属蒸气激光器(DPAL)兼具化学和固体激光器的优势并克服了各自的不足,具有极高的量子效率(钾 99.5%,铷 98.4%,铯 95.2%),能够对气体介质进行流动散热,可以进行很好的热管理,是一种具有向高功率领域发展潜力的新型激光器^[1-2]。目前,公开报道的文献有 DPAL 最高出光功率为 145 W,笔者单位也于 2011 年实现了国内半导体泵浦铷蒸气激光器的首次出光^[3]。DPAL 内部具有碰撞能量转移和电离效应,这些效应对于未来的大功率 DPAL 运行的影响如何,以及多能级效应是否为 DPAL 向大功率领域发展的制约因素现都未有明确结论,因此对高泵浦强度下 DPAL 碰撞能量转移效应的研究具有重要意义^[4-5]。

随着泵浦(5S_{1/2}→P_{3/2})和激射(5P_{1/2}→5S_{1/2} 过程铷蒸气中上能级激发态(5P_{1/2}, 5P_{3/2})的粒子数密度会大大增加,并能通过碰撞过程能够达到更高能级,对反转粒子数造成损耗。现有的 DPAL 方程模型,一般未考虑或简化了碰撞能量转移效应模型。如在参考文献[6]中,仅考虑了 Rb*(5P_{3/2})+Rb*(5P_{3/2})→Rb(5D)+Rb(5S_{1/2})这一碰撞过程,并忽略了 5D 能级的分裂。由于铷的 2E_{SP}≈E_{5D},所以 5D 能级碰撞能量转移截面系数最大,比其他能级高一个数量级以上。因此文中只考虑 5D 能级的碰撞能量转移效应,建立了考虑 Rb*(5P_{1/2})+Rb*(5P_{1/2}),Rb*(5P_{1/2})+Rb*(5P_{3/2})和 Rb*(5P_{3/2})+Rb*(5P_{3/2})到 5D_{3/2},5D_{5/2} 能级三个碰撞过程的铷蒸气激光器速率方程模型,研究了碰撞能量转移在高泵浦强度下对铷蒸气激光器激射过程的影响。

1 理论模型

铷金属蒸汽激光器是以碱金属原子饱和和蒸汽作为增益介质,利用其外层价电子能级跃迁实现激光作用的典型的三能级气体激光器。由于铷原子间的相互碰撞,处于激发态的铷原子可能被激发到更高能级。因此,需要重新计算各能级上粒子数密度的分布,铷原子能级图如图 1 所示。图中,5S_{1/2} 为基态能级,5P_{1/2} 和 5P_{3/2} 为电子自旋-轨道相互作用产生的精细结构能级。5P_{3/2}→5P_{1/2} 为电偶极禁戒跃迁,需要添加缓冲气体通过碰撞弛豫的过程实现粒子数的转

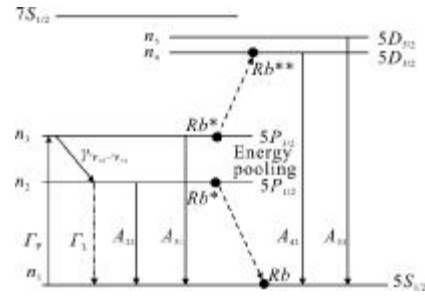


图 1 铷原子能级结构示意图

Fig.1 Rubidium energy levels involved in Energy Pooling

移。5D_{3/2}、5D_{5/2}、7S_{1/2} 和为碰撞能量转移效应使铷原子被激发到的更高能级。Rb* 为激发态铷原子;Rb** 碰撞能量转移产生的更高能级的铷原子;Γ_p、Γ_L 为泵浦和激射过程;A₂₁、A₃₁、A₄₁ 和 A₅₁ 分别为对应能级的自发辐射过程;Energy Pooling 为激发态铷原子间的碰撞能量转移过程。

1.1 碰撞能量转移

碰撞能量转移效应(Energy Pooling),即两个激发态原子发生碰撞的过程。在此过程中,其中一个原子回到基态,另一个原子处于更高的激发态^[7]。其过程见如图 1,铷原子的碰撞能量转移过程表示为^[8]:

$$Rb^*(5P_J) + Rb^*(5P_{J'}) \rightarrow Rb(5D_{J'}) + Rb(5S_{1/2}) + \Delta E \quad (1)$$

式中:Rb(5D_{J'})为更高的激发能级;Rb(5S_{1/2})为基态能级。J 和 J'可取 1/2,3/2。J''可取 3/2,5/2。也就是说,在铷原子中,由碰撞能量转移至 5D_{3/2} 能级的过程中包涵三种碰撞类型,即 Rb*(5P_{1/2})+Rb*(5P_{1/2}),Rb*(5P_{1/2})+Rb*(5P_{3/2})和 Rb*(5P_{3/2})+Rb*(5P_{3/2})。

稳态下的碰撞能量转移过程速率方程可以表示为^[9]:

$$\frac{d}{dt} N(5D_{J'}) = 0 = \frac{k}{2} N^2(5P) - N(5D_{J'}) / \tau_{5D_{J'}} \quad (2)$$

$$\frac{k}{2} N^2(5P) = \frac{k_1}{2} N^2(5P_{1/2}) + k_2 N(5P_{1/2}) + \frac{k_3}{2} N^2(5P_{3/2}) \quad (3)$$

式中:k 为碰撞速率常数;J''取 3/2,5/2;τ_{5D_{J'}} 为 5D_{J'} 能级辐射寿命;k₁ 和 k₃ 的系数 1/2 表示两个全同粒子碰撞的几率权重。可以看出 5D_{J'} 能级粒子是由处于 5P_{1/2}, 5P_{3/2} 能级的粒子按照几率随机碰撞产生。

1.2 泵浦速率和激光发射速率

泵浦和激光发射速率,考虑一次双程情况下的泵浦和激射过程,并对此过程的粒子数密度进行平均^[10],过程如图 2 所示。

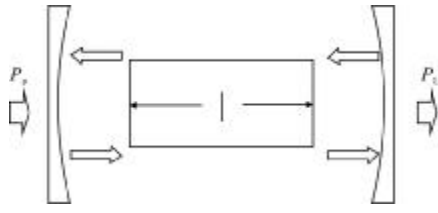


图 2 端面泵浦的铷激光器示意图

Fig.2 Schematic diagram of end-pumped rubidium lasers

在此过程中的泵浦速率 $\Gamma_p(\text{s}^{-1} \cdot \text{m}^{-3})$ 表示为^[11]:

$$\Gamma_p = \frac{\eta_{\text{mode}} \eta_{\text{del}}}{V_L} \int d\lambda \cdot \frac{1}{hc/\lambda} P_p \cdot g_p(\lambda) \cdot \left\{ 1 - \exp \left[- \left(n_1 - \frac{1}{2} n_3 \right) \sigma_{13}^{\text{He-broadened}}(\lambda) \cdot l \right] \right\} \cdot \left\{ 1 + R_p \exp \left[- \left(n_1 - \frac{1}{2} n_3 \right) \sigma_{13}^{\text{He-broadened}}(\lambda) \cdot l \right] \right\} \quad (4)$$

式中: η_{mode} 为激光与泵浦光模式匹配因子, 定义为 $\eta_{\text{mode}} = V_{\text{laser}}/V_{\text{pump}}$; η_{del} 为泵浦光传输效率; V_L 为激光模与增益介质的交叠体积; $\sigma_{13}^{\text{He-broadened}}$ 为泵浦光发射截面;

$$\frac{dn_1}{dt} = \Gamma_p + \Gamma_L + \frac{n_2}{\tau_{21}} + \frac{n_3}{\tau_{31}} + \frac{n_4}{\tau_{41}} + \frac{n_5}{\tau_{51}} + \frac{k_1}{2} n_2^2 + k_1 n_2 n_3 + \frac{k_3}{2} n_3^2 + \frac{k'_1}{2} n_2^2 + k'_1 n_2 n_3 + \frac{k'_3}{2} n_3^2 \quad (6)$$

$$\frac{dn_2}{dt} = -\Gamma_L + \gamma^2 P_{3/2-2P_{1/2}} \{ (n_3 - n_2) - [2 \exp(-\frac{\Delta E}{k_B T}) - 1] n_2 \} - \frac{n_2}{\tau_{21}} - 2 \cdot \left(\frac{k_1}{2} n_2^2 + \frac{k_2}{2} n_2 n_3 + \frac{k'_1}{2} n_2^2 + \frac{k'_2}{2} n_2 n_3 \right) \quad (7)$$

$$\frac{dn_3}{dt} = \Gamma_p + \gamma^2 P_{3/2-2P_{1/2}} \{ (n_3 - n_2) - [2 \exp(-\frac{\Delta E}{k_B T}) - 1] n_2 \} - \frac{n_3}{\tau_{31}} - 2 \cdot \left(\frac{k_3}{2} n_3^2 + \frac{k_2}{2} n_2 n_3 + \frac{k'_3}{2} n_3^2 + \frac{k'_2}{2} n_2 n_3 \right) \quad (8)$$

$$\frac{dn_4}{dt} = \frac{k_1}{2} n_2^2 + k_2 n_2 n_3 + \frac{k_3}{2} n_3^2 - \frac{n_4}{\tau_{41}} \quad (9)$$

$$\frac{dn_5}{dt} = \frac{k'_1}{2} n_2^2 + k'_2 n_2 n_3 + \frac{k'_3}{2} n_3^2 - \frac{n_5}{\tau_{51}} \quad (10)$$

$$n_0 = n_1 + n_2 + n_3 + n_4 + n_5 \quad (11)$$

根据公式(2)和(3)对三能级速率方程模型进行修正得到以上速率方程。其中,公式在(7)、(8)中 k_2 、 k'_2 前的速率系数 $1/2$ 为 n_2 、 n_3 能级粒子数碰撞几率权重。以上速率方程在稳态下,未考虑 n_4 、 n_5 能级之间的弛豫过程。通过计算得到 n_4 、 n_5 能级粒子掉落至 n_2 、 n_3 过程对结果影响不大。因此,假设 n_4 、 n_5 能级粒子在寿命 ($\tau_{41} = 239.72 \text{ ns}$; $\tau_{51} = 231.48 \text{ ns}$)^[13] 内直接掉落至 n_1 能级。

方程中 n_1 、 n_2 、 n_3 、 n_4 、 n_5 为 $5S_{1/2}$ 、 $5P_{1/2}$ 、 $5P_{3/2}$ 、 $5D_{3/2}$ 、 $5D_{5/2}$ 能级粒子数密度, n_0 为总粒子数密度; $\gamma_{P_{3/2-2P_{1/2}}}$

$g_p(\lambda)$ 为泵浦源归一化频率分布; l 为增益长度。

激光发射速率 $\Gamma_L(\text{s}^{-1} \cdot \text{m}^{-3})$ 表示为:

$$\Gamma_L = \frac{1}{V_L} \frac{P_L}{h\nu_{12}} \frac{R_{\text{oc}}}{1 - R_{\text{oc}}} \cdot \left\{ \exp \left[\left(n_2 - n_1 \right) \sigma_{21}^{\text{He-broadened}} \cdot l \right] - 1 \right\} \cdot \left\{ 1 + \text{Tr}^2 \exp \left[\left(n_2 - n_1 \right) \sigma_{21}^{\text{He-broadened}} \cdot l \right] \right\} \quad (5)$$

其中, Tr 为单程透过率, 认为全部集中在高反射一端, 包括腔中所有的被动损耗在内; R_{oc} 为耦合输出镜反射率。

1.3 速率方程

通过碰撞能量转移, 处于激发态的 $5P_{1/2}$ 、 $5P_{3/2}$ 能级粒子可到达 $5P_{3/2}$ 、 $5P_{5/2}$ 和 $7S$ 能级, 但由于至能级的碰撞截面比 $5P_{3/2}$ 、 $5P_{5/2}$ 能级碰撞截面小一个量级^[12], 所以文中忽略了 $7S$ 能级的碰撞能量转移效应。考虑 $5P_{3/2}$ 、 $5P_{5/2}$ 能级碰撞能量转移的铷蒸气激光器速率方程如下:

为精细结构混合弛豫速率; Γ_p 为单位时间单位体积被从 n_1 能级到 n_3 能级一次双程泵浦的粒子数密度; Γ_L 为单位时间单位体积从 n_2 能级跃迁到 n_1 能级一次双程激光消耗的粒子数密度, 此时, 认为激光以单模运转, 且模频率为原子中心频率; τ_{21} 、 τ_{31} 、 τ_{41} 、 τ_{51} , 为 n_2 、 n_3 、 n_4 、 n_5 的能级寿命; k_1 、 k_2 、 k_3 分别为碰撞能量转移效应中, $\text{Rb}^*(5P_{1/2}) + \text{Rb}^*(5P_{1/2})$, $\text{Rb}^*(5P_{1/2}) + \text{Rb}^*(5P_{3/2})$ 和 $\text{Rb}^*(5P_{3/2}) + \text{Rb}^*(5P_{3/2})$ 三种碰撞类型至 $5D_{3/2}$ 能级的速率常数。 k'_1 、 k'_2 、 k'_3 分别为以上三种碰撞类型至 $5D_{5/2}$ 能级的速率常数。

为了达到出光阈值, 需要将铷蒸气加热到 110°C 以上。参考文献[14]中碰撞能量转移速率常数是在 $50 \sim 60^\circ\text{C}$ 下测得的, 因此, 模型中 $110 \sim 150^\circ\text{C}$ 的速率常数通过公式 $k = A \cdot \exp(B/T)$ 采用拟合方法得到, 见表 1。

表 1 拟合得到的碰撞能量转移速率常数

Tab.1 Energy Pooling rate coefficient by function fitting

$k/\text{cm}^3\text{s}^{-2}$	110 °C	130 °C	150 °C
k_1	1.511×10^{-10}	1.698×10^{-10}	1.887×10^{-10}
k_2	5.504×10^{-10}	5.961×10^{-10}	6.407×10^{-10}
k_3	3.611×10^{-10}	4.316×10^{-10}	5.073×10^{-10}
k'_1	2.003×10^{-10}	2.396×10^{-10}	2.818×10^{-10}
k'_2	1.057×10^{-10}	1.399×10^{-10}	1.804×10^{-10}
k'_{31}	5.66×10^{-10}	7.494×10^{-10}	9.661×10^{-10}

当泵浦功率达到阈值功率时,在稳态下粒子数密度满足条件:

$$I_0 \exp\left[(2(n_2 - n_1) \sigma_{21}^{\text{He-broadened}} \cdot l) \cdot \text{Tr}^2 \cdot R_{\text{OC}} \right] = I_0 \quad (12)$$

联立公式(9)、(10)、(11)、(12)可得到 n_2 和 n_3 粒子数关系。在稳态下,各能级粒子数密度变化率等于零,即公式(8)中 $dn_3/dt=0$ 。将 n_2 、 n_3 联立带入公式(8),通过数值计算方法得到 n_2 、 n_3 。再分别带入公式(9)、(10)、(11)可得到 n_4 、 n_5 、 n_1 。

2 模拟结果及分析

通过计算可以得出,随着温度增高,碰撞能量转移更加明显。温度低于 130 °C,碰撞能量转移反而促使了激光发射速率增加,随着泵浦强度增加,激光发射速率相对减少。温度高于 130 °C,碰撞能量转移对激光发射速率作是一种损耗,随着泵浦强度增加,碰撞能量转移相应增强,如图 3 所示。图 3 中,纵坐标表示碰撞能量转移对激光发射速率的相对影响。其中 ΔI_L 为不考虑碰撞能量转移的激光发射速率,

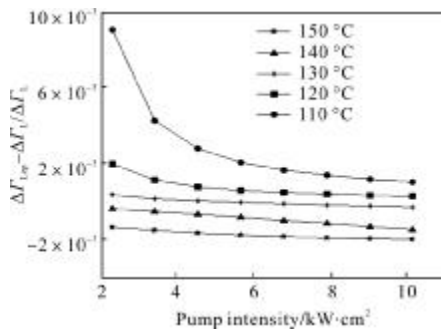


图 3 碰撞能量转移对激光发射速率影响

Fig.3 Influence of Energy Pooling on transition rates associated with pump photon emission

ΔI_{Lep} 为考虑碰撞能量转移后的激光发射速率。

在固定温度下,碰撞能量转移使得泵浦速率和 n_1 、 n_2 、 n_3 能级粒子数密度相对减少。随着泵浦强度增加 n_1 、 n_2 、 n_3 能级粒子数密度减少更加剧烈。泵浦强度在 10kW/cm² 量级下,碰撞能量转移对激发态粒子数密度的影响比例在 10⁻³ 量级,如图 4 所示。图 4 中,纵坐标表示碰撞能量转移对各能级粒子数密度和泵浦速率的相对影响。其中, n 为不考虑碰撞能量转移相应过程的粒子数密度, n_{ep} 为考虑碰撞能量转移后的粒子数密度。

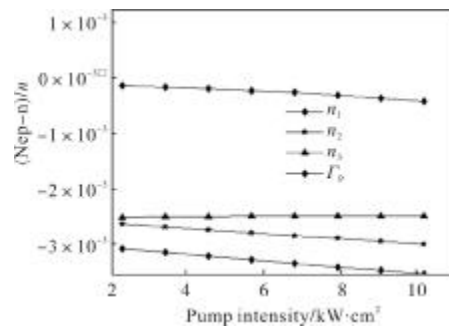


图 4 碰撞能量转移对各能级粒子数密度影响(T=130 °C)

Fig.4 Influence of Energy Pooling on rubidium density in different energy levels (T=130 °C)

当铷蒸气池温度为 130 °C 时,随着泵浦强度的增加,碰撞能量转移对减小了激光的自发辐射、散射和热效应,影响随之增强。并且碰撞能量转移效应对自发辐射影响较大,如见图 5 所示。图 5 中,纵坐标表示碰撞能量转移对各过程的相对影响。其中, I 为不考虑碰撞能量转移相应过程的强度, I_{ed} 为考虑碰撞能量转移后相应过程的强度。

参考文献[6]中建立的铷蒸气激光器速率方程模型考虑了碰撞能量转移效应,但仅考虑了 $R_b^*(5P_{3/2})+$

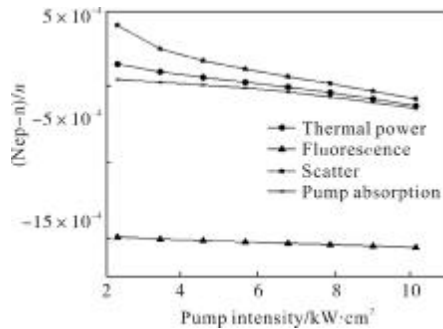


图 5 碰撞能量转移对激光过程影响(T=130 °C)

Fig.5 Influence of Energy Pooling on lasing processes(T=130 °C)

$R_b^*(5P_{3/2}) \rightarrow R_b(5D) + R_b(5S_{1/2})$ 这一碰撞过程,并忽略了 5D 能级的分裂。文中计算结果于参考文献[6]进行比较,可以看出,综合考虑了 $R_b^*(5P_{3/2}) + R_b^*(5P_{3/2})$, $R_b^*(5P_{1/2}) + R_b^*(5P_{3/2})$ 和 $R_b^*(5P_{3/2}) + R_b^*(5P_{3/2})$ 程后,碰撞能量转移更加明显,如图 6 所示。图 6 中,纵坐标表示碰撞能量转移对激光发射速率的相对影响。其中, $\Delta\Gamma_L$ 为不考虑碰撞能量转移的激光发射速率, $\Delta\Gamma_{Lep}$ 为考虑碰撞能量转移后的激光发射速率。

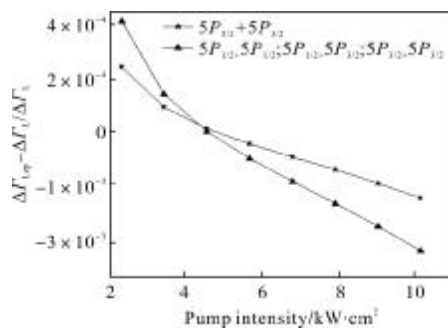


图 6 $R_b^*(5P_{3/2}) + R_b^*(5P_{3/2})$ 与 $R_b^*(5P_1) + R_b^*(5P_1)$ 过程的碰撞能量转移 ($T=130^\circ\text{C}$)

Fig.6 Comparison between $R_b^*(5P_{3/2}) + R_b^*(5P_{3/2})$ and $R_b^*(5P_1) + R_b^*(5P_1)$ processes ($T=130^\circ\text{C}$)

3 结论

通过计算模拟,可以得到以下结论:(1) 即使在高泵浦强度下 (10 kW/cm^2),碰撞能量转移对铷蒸气激光器激射过程影响仍较小,影响程度为 10^{-3} 量级。主要原因是,碰撞能量转移的强度与激发态能级粒子数密度和能量碰撞转移速率系数两个因素有关,其随着泵浦强度、粒子数密度增加而提高。实现流动介质的功率的 DPAL,可以进行很好的热管理。控制温升一方面不会使激发态能级的粒子数密度增加。另一方面,不会使碰撞转移速率系数随着温度升高而增加。(2) 碰撞能量转移对于激光发射速率并不是总以损耗的形式出现,在低粒子数密度、低泵浦强度条件下,碰撞能量转移反而促进了激光发射速率的增加,其原因在于虽然激发态的粒子数密度由于碰撞能量转移效应减少,但是在低粒子数密度、低泵浦强度条件下,碰撞能量转移对自发辐射的抑制效果更为显著,因此反而会促使激光发射速率增加。

总之,笔者认为碰撞能量转移效应并不会对大功率的 DPAL 运行造成显著影响,产生的高激发态

原子很少。但在高泵浦强度下,这些高激发态原子有可能作为数级“阶梯”,通过光电离效应对反转粒子数造成持续损耗,这是下一步工作需要重点研究的。

参考文献:

- [1] Yang Zining, Wang Hongyan, Lu Qisheng, et al. Influence of spectrum characteristics on diode pumped alkali laser [J]. High Power Laser and Particle Beams, 2010, 22(10): 1-6. (in Chinese)
- [2] Zhu Qiang, Yu Jianghua, Quan Hongyan, et al. Theoretical analysis of high-power diode laser pumped alkali vapor laser [J]. Infrared and Laser Engineering, 2007, 36: 85-88. (in Chinese)
- [3] Yang Zining, Wang Hongyan, Hua Weihong, et al. Diode-pumped rubidium vapor laser [J]. High Power Laser and Particle Beams, 2011, 23(9): 2274-2275. (in Chinese)
- [4] Krupke W F. Diode pumped alkali lasers [C]//SPIE, 2008, 7005: 700521.
- [5] Wu Wuming, Leng Jinyong, Zhou Pu, et al. Research progress of high average power electric-energy laser [J]. Infrared and Laser Engineering, 2011, 40(2): 203-209. (in Chinese)
- [6] Sheldon Shao Quan Wu, Hydrocarbon-free resonance transition 795 nm rubidium laser [D]. California: University of California, 2009: 93-98.
- [7] Vadla C. Energy pooling in caesium vapour [J]. The European Physical Journal D, 1998, 1: 259-264.
- [8] Neuman J A, Gallagher A, Cooper J. Pooling collisions in barium [J]. Physical Review A, 1994, 50(2): 1292-1300.
- [9] Jabbour Z J, Namiotka R K, Huennekens J. Energy-pooling collisions in cesium: $6P+6P-6S+(nl=7P,6D,8S,4F)$ [J]. Physical Review A, 1996, 54(2): 1372-1384.
- [10] Beach R J, Krupke W F, Kanz V K, et al. End-pumped continuous-wave alkali vapor lasers [J]. Opt Soc Am B, 2004, 21(12): 2151-2163.
- [11] Yang Zining, Wang Hongyan, Lu Qisheng, et al. Influence of fine structure mixing rate on laser diode pumped alkali laser [J]. Chinese Journal of Lasers, 2010, 37 (10): 2502-2507. (in Chinese)
- [12] Barbier L, ChCret M. Energy pooling process in rubidium vapour [J]. Phys B At Mol Phys, 1983, 16: 3213-3228.
- [13] Constantine T E. Lifetimes of alkali-atom Rydberg states [J]. Physical Review, 1984, 30(6): 2881-2909.
- [14] Cui Xiuhua, Mu Baoxia, Wang Shuying, et al. Energy pooling collisions in rubidium: $5P+5P-5S+5D$ [J]. Journal of Atomic and Molecular Physics, 2006, 23(4): 753-756. (in Chinese)