

CH_3OH HCOOH CH_3F 连续波 远红外光泵激光器

苏锦文 叶妙根 史国良 施诚良

(中国科学院上海技术物理研究所)

摘要——设计了一种具有较高泵光吸收效率的远红外开式腔激光器；获得并测量了甲醇、甲酸、甲基氟从 $70.6 \mu\text{m}$ 到 $570 \mu\text{m}$ 多条远红外激光谱线及其横模；实验研究了激光器的运转特性，应用本实验装置作为远红外辐射源，进行了亚毫米波混频外差接收实验。

一、引言

远红外光泵激光器可应用于表面物理、远红外光谱学、等离子体诊断、光频测量、远红外探测器特性研究；也可以作为远红外辐射计的本振源，进行亚毫米波混频外差接收，应用于太阳、月亮、木星、猎户星座等天文观察^[1]。该项工作最早为 T. Y. Chang 等人进行^[2]，又为 D. T. Hodges 等进一步发展^{[3], [4]}。国内，傅恩生等最早用 CH_3F ^[5]、 CH_3OH ^[6] 进行了实验研究。我们在这些基础上，计算比较了几种远红外共振腔，选择了泵光束吸收效率较高的远红外开式腔，分别用甲醇、甲酸、甲基氟工作物质，获得了从 $70.6 \mu\text{m}$ 到 $570 \mu\text{m}$ 多条远红外激光谱线；用腔长扫描方法测量了激光谱线的波长及其横模；实验研究了远红外激光器的运转特性。

本实验装置提供了较高输出功率 TEM_{00} 模远红外相干辐射，应用本实验装置以及我室研制的 GaAs 肖特基二极管外差接收系统，进行了 $496 \mu\text{m}$ 混频外差接收实验^[1]。但本实验装置的腔长扫描波长测量精度、激光输出的稳定性等尚待改进。

二、原 理

选频 CO_2 激光器是远红外光泵激光器的典型泵浦源，它在 $9 \sim 11 \mu\text{m}$ 范围内存在 130 多条激光谱线。远红外激光器中极性气体分子工作物质的振转谐振吸收线与 CO_2 激光谱线中的某些谱线接近于重合。其频率差大约在 100 MHz 范围内。因而可选择适当的 CO_2 红外

本文 1983 年 2 月 23 日收到。

1) 实验由周宝庆, 张惠尔, 顾旭昌, 董永初与本文作者共同进行。

激光谱线作为泵浦光源，使气体分子跃迁到激发振动态，由此产生激发振动态中相应转动能级之间的粒子数反转。在这一过程中，也可能因基振动态中某一转动能级上粒子的去空，而产生基振动态中相应转动能级之间的粒子数反转。由此形成激光作用的必要条件。又由于远红外激光气体分子具有永久电矩，可产生 $\Delta v=0$, $\Delta J=1$ (v , J 分别为振动和转动量子数) 纯转动能级的跃迁，因而产生远红外激光辐射。选择不同的泵浦激光谱线或同时选择不同的工作气体及相应的泵浦谱线，可获得不同波长的远红外相干辐射。

三、实验装置

我们的实验装置如图 1 所示。 CO_2 石英选频激光器腔长约 190 cm，放电区长度约

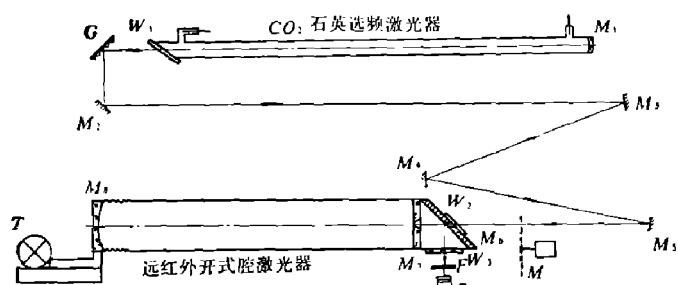


图 1 远红外光泵激光器装置

M_1 —镀金凹腔镜； M_2 、 M_3 、 M_4 —反射镜； M_5 —聚焦镜； M_6 —铝基板镀金反射镜； M_7 —带有耦合孔的镀金平镜； M_8 —远红外镀金凹腔镜； W_1 、 W_2 —ZnSe 窗口； W_3 —晶体石英窗口； G —不锈钢基底镀铝光栅； F —粉末滤光片； D —热释电探测器； M —调制盘； T —测微平台

166 cm，放电管直径约 12 mm，凹腔镜 M_1 曲率半径为 5 m，光栅为原刻 100 条/毫米、闪耀波长 $10.6 \mu\text{m}$ ，一级衍射效率为 85%。 CO_2 激光由与光栅垂直的反射镜 M_2 输出， M_2 与光栅台联动，便于光路调节。旋转光栅台可获得所需的 CO_2 激光谱线。初步测量，9P(20) 谱线输出功率可达 30 W；9P(36) 大于 20 W。

CO_2 泵光束经反射镜 M_3 、 M_4 反射后，被凹反射镜 M_5 聚焦。聚焦泵光束通过 ZnSe 窗口 W_2 ；反射镜 M_6

的中心孔以及反射镜 M_7 的耦合孔而进入远红外共振腔。

我们设计的远红外共振腔结构与 T. Y. Chang 的结构相同^[7]。这是一种具有单圆耦合孔的开式腔。泵光输入和远红外激光输出都是通过镀金平镜 M_7 中心耦合孔。由 M_7 和 M_8 组成远红外共振腔。 M_8 与波纹管相接，被安装在测微平台 T 上，用电机驱动，可使远红外激光器腔长作精密的扫描运动。

为了得到较高的泵光吸收效率和远红外输出功率，必须选择合适的腔结构参数。

远红外工作气体对泵光的吸收系数很低（例如 CH_3F 吸收系数约为 $1 \times 10^{-6} \text{ mm}^{-1} \cdot \text{mTorr}^{-1}$ ），工作气压也不高（几十至几百毫托），泵光束必须在腔内往返多次才可达到一定的吸收。而泵光在腔内每往返一次，都有耦合孔溢出损耗、腔镜吸收和衍射损耗。这些均与腔几何结构参数有关。我们基于高斯光束在腔内的往返变换，通过复光束参数对平凹腔的往返矩阵运算，应用电子计算机，计算了不同的腔结构参数所具有的不同泵光束吸收效率等，如表 1 所示。我们选择 $R=5300 \text{ mm}$ 、 $r=35 \text{ mm}$ 、 $L=1200 \text{ mm}$ 、 $r_0=1.25 \text{ mm}$ 远红外开式腔，在最佳泵光束光腰半径输入条件下（ $\omega_{00}=0.3 \text{ mm}$ ），泵光吸收效率可达到 33%，优于 T. Y. Chang 等人的设计。

经聚焦镜 M_5 会聚的最佳泵光束光腰位于反射镜 M_7 耦合孔平面内侧。反射镜 M_6 与远红外激光器光轴成 45° ，其中心孔半径由聚焦高斯光束的计算来确定。本装置中，聚焦镜 M_5 焦距为 $f=396.14 \text{ mm}$ ，反射镜 M_6 中心孔半径为 0.9 mm 。图 1 中调制盘 M 的调制频

率为 10 Hz。实验中使用谱线分析仪测量泵浦激光谱线。远红外激光经反射镜 M_6 反射，由 z 向切割的晶体石英窗口 W_3 输出。采用我所研制的带有聚乙烯窗口的热释电探测器 D 作为远红外接收器。为消除杂散光对远红外探测的影响，在热释电探测器前方安装了粉末远红外滤光片 F 。热释电探测器输出信号经前置放大器放大后，分别由远红外激光测试仪，示波器， $X-Y$ 记录仪及 LY₄ 型数字打印机等仪器显示。

表 1 泵光吸收效率的计算结果(计算中取 $\lambda=496 \mu\text{m}$, 气压 20 mTorr)

参 数	腔	1 ^[2]	2 ^[7]	3 ^[8]	4 ^[5]	5*
凹腔曲率半径 R (mm)		2300	2300	1890	3500	5300
腔长 L (mm)		930	930	770	1200	1200
L/R		0.4	0.4	0.41	0.34	0.23
腔片半径 r (mm)		23.75	50	23.75	35	35
耦合孔半径 r_0 (mm)		0.6	1.08	0.6	2.5(1.5)	1.25
最佳输入光腰半径 ω_{00} (mm)		0.25	0.15	0.20	0.25	0.30
泵光在腔内往返次数		54	46	59	5	19
泵光吸收效率(%)		31.4	31.8	27.2	17.4(18.6)	33.0
泵光耦合孔溢出损耗率(%)		28.9	34.4	29.3	67.6(65.2)	34.9
泵光衍射损耗率(%)		6.9	0.6	9.2	2.1(2.2)	5.7
腔片吸收损耗率(%)		32.7	33.1	34.3	12.9(14)	26.4
远红外参数	F 数	1.22	5.42	1.48	2.06	2.06
	光腰半径(mm)	13.35	13.35	12.11	16.2	18.71
	光斑半径(mm)	17.3	17.3	15.73	19.98	21.28
	模体积(cm^3)	638.5	638.5	436	1161	1449

* 本文设计选择的远红外开式腔

四、实验与结果分析

1. 我们分别用甲醇、甲酸、甲基氟为工作物质，用 $X-Y$ 记录仪记录远红外激光谱线的腔长扫描曲线，测量了从 $70.6 \mu\text{m}$ 到 $570 \mu\text{m}$ 多条远红外激光谱线。表 2 列出测量结果。表中所列远红外激光功率是用定标热释电探测器测量的；工作气体压力是用热偶真空规测量的，未对各种气体分子进行校正。远红外激光系统中工作气体是流动的。气体压力为其平衡数值。

2. 由腔长扫描曲线，不仅可确定远红外激光谱线波长，而且还可观察到横模分布^[9]。对于同一泵浦激光谱线仅存在单支强远红外激光辐射的情况，更容易观察和测量其远红外激光谱线的横模分布。

表 2 远红外激光谱线测量结果

远红外谱线波长 (μm)	波长测量平均值 (μm)	误差 $\Delta\lambda$ (μm)	气体分子	远红外输出功率 (mW)	泵光谱线	气压 (mTorr)
70.6	72.5	1.9	CH_3OH	0.5	9P(34)	58
96.5	98.4	1.9	CH_3OH	2.0	9R(10)	78
118.8	119.0	0.2	CH_3OH	15.0	9P(36)	100
246.0	242.0	4.0	CH_3OH	2.0	10R(38)	68
254.0	255.5	1.5	CH_3OH	2.0	10R(38)	68
393.6	394.2	0.6	HCOOH	1.8	9R(18)	70
394.2	392.6	1.6	HCOOH	0.8	9R(16)	50
432.6	431.2	1.4	HCOOH	2.0	9R(20)	75
433.0	440.0	7.0	HCOOH	1.7	9R(18)	70
496.0	490.2	5.8	CH_3F	4.0	9P(20)	20
513.2	517.5	4.2	HCOOH	1.3	9R(24)	70
570.5	573.4	2.9	CH_3OH	0.3	9P(16)	50

对于 TEM_{qnm} 模, 产生激光振荡的共振腔腔长 $L_{qnm}^{(\lambda)}$ 应满足下列条件:

$$L_{qnm}^{(\lambda)} / (\lambda/2) = q + \frac{1}{\pi} (2m+n+1) \cos^{-1} \sqrt{g_1 g_2},$$

式中 λ 、 q 、 m 、 n 分别为远红外激光波长、纵模及横模指数, g_1 、 g_2 为激光器结构因子。对于本实验装置, $[L_{qnm}^{(\lambda)} - L_{q00}^{(\lambda)}] / (\lambda/2)$ 的理论数据与实验数据列于表 3 中, 并将所确定的横模指数标明在图 2 中。表 4 是横模的简并情况。

表 3 $[L_{qnm}^{(\lambda)} - L_{q00}^{(\lambda)}] / (\lambda/2)$ 的理论数据和实验数据

TEM n, m	理论值	实 验 数 据				
		$\lambda=394.2 \mu\text{m}$	$\lambda=432.6 \mu\text{m}$	$\lambda=496 \mu\text{m}$	$\lambda=513.2 \mu\text{m}$	$\lambda=570 \mu\text{m}$
TEM_{10}	0.158	0.16	0.16	0.16	0.16	0.17
TEM_{01}	0.316			0.34	0.35	
TEM_{11}	0.474	0.52	0.55			
工作物质	HCOOH	HCOOH	CH_3F	HCOOH	CH_3OH	
工作气压 (mTorr)	50	75	20	70	50	
泵浦谱线	9R(16)	9R(20)	9P(20)	9R(24)	9P(16)	

表 4 q 不变情况下横模简并情况

$[L_{qnm}^{(\lambda)} - L_{q00}^{(\lambda)}] / (\lambda/2)$	横 模 (n, m)
0	(0, 0)
0.158	(1, 0)
0.316	(0, 1) (2, 0)
0.474	(1, 1) (3, 0)
0.631	(0, 2) (2, 1) (4, 0)
0.789	(1, 2) (3, 1) (5, 0)
0.947	(2, 2) (0, 3) (4, 1) (6, 0)

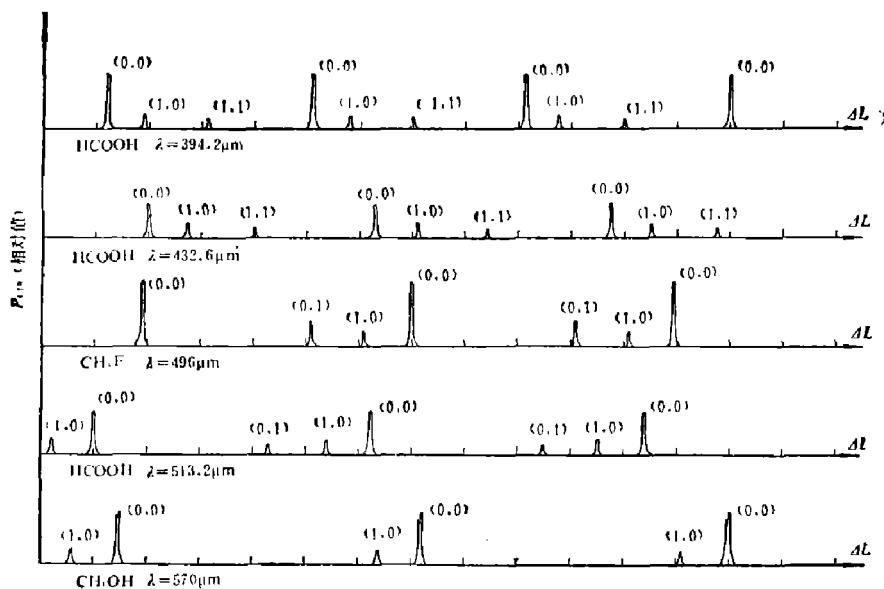


图2 远红外激光谱线的横模分布

(图中横坐标为远红外激光器腔长改变量 ΔL , 每小格为 $50 \mu\text{m}$, 纵坐标为远红外激光输出功率相对值)

用腔长扫描方法可测量激光谱线波长及其横模分布, 这是远红外激光器的特点。实验结果说明, 本实验装置可提供较好的 TEM_{00} 模远红外激光输出。

3. 远红外激光输出与工作气体压力有关。图3是由X-Y记录仪描出的 CH_3OH $118.8 \mu\text{m}$ 激光输出与气压关系曲线。

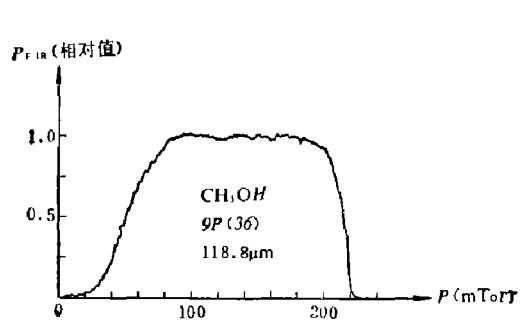


图3 远红外激光输出功率与工作气压关系

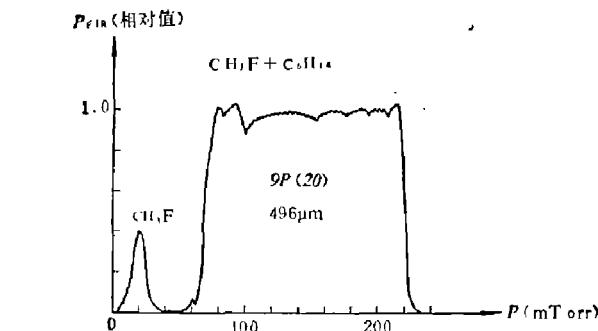


图4 附加缓冲气体对远红外激光输出功率的影响

低气压下, 随着气压的增加, 远红外激光输出功率增长; 在高气压下, 由于气体分子的转动弛豫速率很快, 而其振动弛豫速率相对地十分缓慢, 激光振动态的转动能级很快恢复到玻尔兹曼分布, 而又不能迅速返回到基振动态。因此使气体分子热化, 形成比环境温度高得多的振动温度, 致使远红外激光输出下降, 甚至截止。

为提高远红外激光输出, T. Y. Chang 等人研究了缓冲气体的作用^[10]。我们用 C_6H_{14} 作为缓冲气体进行实验。图4是记录仪描出的 CH_3F (附加 C_6H_{14} 气体) $496 \mu\text{m}$ 激光输出与气压的关系曲线。

当纯 CH_3F 气体分子气压增到约 31 mTorr 时, $496 \mu\text{m}$ 激光输出几乎截止。此时保持 CH_3F 气压不变, 加入 C_6H_{14} 气体。随着 C_6H_{14} 气体压力的增加, 远红外激光输出增长, 并可得到提高一倍多的远红外激光输出。

缓冲气体对提高远红外激光输出的作用是十分明显的。这是因为, 一方面通过 $V-T/R$ (振动-平动/转动)能量转移而使 CH_3F 分子的振动能量转移到缓冲气体上来; 另一方面, 缓

冲气体 C_6H_{14} 有比 CH_3F 分子大得多的能力, 将振动能量运输到激光器管壁使之消激发。因而充入缓冲气体 C_6H_{14} 后, 降低了 CH_3F 气体分子的振动温度。

由此可见, 研究和寻找各种缓冲气体及其配比方案, 是提高光泵远红外激光输出功率的重要途径之一。

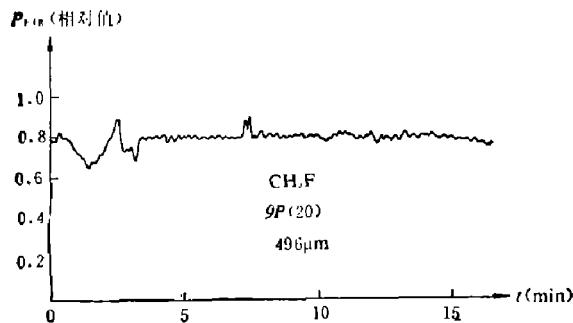


图 5 远红外激光输出稳定性曲线

4. 图 5 是 CH_3F $496 \mu\text{m}$ 激光输出的稳定性实验结果。由于本实验装置尚未采取泵光稳频等项措施, 远红外激光输出功率的涨落较大, 一般在 $\pm 7\%$ 范围内, 但也会出现偶然的 $+33\%$ 和 -20% 的输出功率变化。

5. 应用本实验装置提供毫瓦级 $496 \mu\text{m}$ 远红外辐射源, 用四毫米九次谐波混频方法, 进行了亚毫米波接收研究。该实验中, 接收

亚毫米波信号的圆锥体和四毫米波导成垂直交叉, 在交叉口放置了 GaAs 肖特基势垒二极管, 作为混频接收元件。 $496 \mu\text{m}$ (604.33 GHz) 信号和本振四毫米波 (67.13 GHz) 中九次谐波分量 (604.17 GHz) 进行差频, 其差频信号经宽带中放 (放大器带宽 500 MHz , 增益 60 dB), 最后在 BP_{12} 全景频谱分析仪上显示。实验观察到接收谱线的中频信号显示位置落在 160 MHz 处, 其信噪比大于 2。

这一混频外差接收实验之成功, 同时也验证了本实验装置对远红外激光谱线波长的测量结果。该实验也是测量远红外激光谱线波长的方法之一。

致谢——本所杨学成、毛伯义、余和昌在建立本实验装置中给予帮助, 陈宁锵提供 ZnSe 材料, 施学成提供定标的热释电探测器等, 作者在此一并致谢。

参 考 文 献

- [1] Rüser H. P. Schultz G. V, Wattenbach R., *Conference digest, Sixth international Conference on infrared and millimeter Waves*, 1981, W-3-3.
- [2] Chang T. Y., *Opt. Commun.*, **1**(1970), 9: 423.
- [3] Hodges D. T and Hartwick T. S., *Appl. Phys. Lett.*, **23**(1973), 5:252.
- [4] Hodges D. T., *IEEE J. Quantum Electron.*, **QE-13**(1977), 6:491.
- [5] 傅恩生等, 激光, **6**(1979), 12: 12.
- [6] 傅恩生等, 光学学报, **2**(1982), 1: 9
- [7] Chang T. Y., *Appl. Phys. Lett.*, **19**(1971), 4: 103.
- [8] Chang T. Y., *Appl. Phys. Lett.*, **17**(1970), 6:249.
- [9] Yamanaka M., Homma Y., et al., *Jap. J. Appl. Phys.*, **13**(1974), 5: 843.
- [10] Chang T. Y, and Lin C., *J. Opt. Soc. Am.*, **66**(1976), 4: 362.

A CW FIR OPTICALLY PUMPED LASER USING CH_3OH , HCOOH OR CH_3F

SU JINWEN, YE MIAOGEN, SHI GUOLIANG, SHI CHENGLIANG

(*Shanghai Institute of Technical Physics, Academia Sinica*)

ABSTRACT

A FIR open-cavity laser with higher pump energy absorption efficiency is designed. Several laser lines and the transverse modes are obtained and measured for CH_3OH , HCOOH and CH_3F in the range from 70.6 to 570 μm . The laser performances are investigated experimentally. Using this laser source, an experiment of submm heterodyne receiving has been carried out.