

温度对仲氢受激拉曼散射的影响

金春植 丁义山

摘要: 研究了仲氢气体温度对受激拉曼散射的影响。导出一个简明的粒子数密度差与温度的关系式。利用该式计算的结果表明, 仲氢拉曼激光器最适宜的工作温度为液氮温度。温度更低时, 拉曼增益出现饱和。借助该式, 讨论了激光在拉曼多程池中的最佳传输次数与温度的关系。降低温度对提高拉曼增益和减少最佳传输次数是一条有效的途径。

一、引言

受激拉曼散射是产生红外激光的重要方法之一。仲氢受激拉曼激光器, 以 TEACO_2 激光为泵浦源, 在仲氢中产生受激转动拉曼散射, 获得 $16\mu\text{m}$ 波段的可调谐激光。这种激光器在激光光谱学和激光化学领域中, 有着重要应用。特别是在铀同位素分离研究中, 它被列为优选激光器。在以前的文章中^[1], 讨论了泵浦光的功率和在拉曼多程池中的传输次数, 对仲氢受激拉曼激光器输出功率的影响。本文讨论仲氢气体的温度对仲氢受激拉曼激光器的增益和输出功率的影响。

仲氢受激拉曼散射中温度的作用, 有人报导过研究结果^[2, 3]。他们的结果指出, 将仲氢的工作温度从室温 (300K) 降到液氮温度 (77K), 对于仲氢的 $\text{So}(0)$ 转动拉曼散射来说, 拉曼增益提高了大约 2.4 倍。因此仲氢受激拉曼激光器一般在低温下运行。根据统计物理的原理, 温度决定着仲氢散射跃迁能级上的粒子数分布, 从而影响到拉曼增益。我们推导出一个简单直观的粒子数分布表达式, 该式将粒子数分布与温度的关系直接同所对应的拉曼跃迁联系起来。利用该式, 计算了从常温 (300K) 直到 20K 时, 拉曼增益随温度的变化情况。结果表明, 液氮温度 (77K) 时的拉曼增益比常温 (300K) 时高约 2.3 倍。当温度在液氮温度以下时, 拉曼增益趋于饱和。泵浦功率越小, 低温对拉曼散射增益的作用效果越明显。

二、拉曼增益与温度的关系

仲氢受激拉曼激光器, 用 TEACO_2 激光泵浦仲氢, 产生受激转动拉曼散射, 获得 $16\mu\text{m}$ 激光。在这里, 散射跃迁发生在仲氢分子的 $J_1 = 0$ 的基态和 $J_2 = 2$ 的高能态之间。拉曼位移 (Raman shift) 为 354.36cm^{-1} 。图 1 为该过程的示意图。不难看出, 要产生有效的拉曼散射, 必须使绝大多数仲氢分子处于 $J_1 = 0$ 的基态。即满足 $N(J_1) \gg N(J_2)$ 的粒子数分布条件。然而, 实际上, 由于 $J_2 = 2$ 能级距离基态很近 (354.36cm^{-1}), 处于基态的仲氢分子很容易被热激发到 $J_2 = 2$ 能级。这样, 基态的粒子数减少, 势必要削弱拉曼散射作用。如果在拉曼散射过程中, 使仲氢气体保持在较低的温度下, 就可以大大减弱上述的热激发作用, 降低

$J_2 = 2$ 能级上的粒子数密度, 保证 $N(J_1) \gg N(J_2)$ 的粒子数分布。从而使激光器具有较高的拉曼增益, 提高输出功率。

我们知道, 不饱和情况下, 泵浦光单次通过程池时, 其拉曼增益由下式给出^[4],

$$\alpha = \frac{4G P_p}{\lambda_p + \lambda_s} \tan^{-1}(L/b), \quad (1)$$

其中, P_p 为泵浦光功率, λ_p, λ_s 分别为泵浦光和 Stokes 光的波长, L 为程池两腔镜间距离, b 为泵浦光的共焦参量, G 为平面波增益系数, 其表达式如下^[4]:

$$G = \frac{8}{5} \cdot \frac{\pi^2 \omega_s}{c^2 n_s^2} \cdot \frac{(J+1)(J+2)}{(2J+1)(2J+3)} \cdot \frac{r}{h\Gamma} \cdot \Delta N, \quad (2)$$

式中的 ΔN 为发生散射跃迁的两能级间的粒子数密度差。对于从 J_1 能级到 J_2 能级的转动拉曼散射, 粒子数密度差由下式给出^[4],

$$\Delta N = N(J_1) - \frac{(2J_1+1)}{(2J_2+1)} N(J_2), \quad (3)$$

$N(J)$ 为转动能级 J 上的粒子数密度, 与温度有如下关系^[4],

$$N(J)/N = \frac{g(J)e^{-E(J)/KT}}{\sum_{J=J_1, J_2} g(J)e^{-E(J)/KT}}, \quad (4)$$

这里, N 为总的粒子数密度, $g(J)$ 为统计权重, 对同质核的双原子分子有:

$$g(J) = (2J+1)g_n, \quad (5)$$

g_n 为核自旋简并度。

由 (4) 式可得到转动能级 J_1 和 J_2 上的粒子数密度分别为:

$$N(J_1) = \frac{g(J_1)e^{-E(J_1)/KT}}{\sum_{J=J_1, J_2} g(J)e^{-E(J)/KT}} \cdot N, \quad (6)$$

$$N(J_2) = \frac{g(J_2)e^{-E(J_2)/KT}}{\sum_{J=J_1, J_2} g(J)e^{-E(J)/KT}} \cdot N \quad (7)$$

由 (6)、(7) 和 (3) 式可得到两能级粒子数密度差为:

$$\Delta N = \left[\frac{g(J_1)e^{-E(J_1)/KT}}{\sum_{J=J_1, J_2} g(J)e^{-E(J)/KT}} - \frac{2J_1+1}{2J_2+1} \cdot \frac{g(J_2)e^{-E(J_2)/KT}}{\sum_{J=J_1, J_2} g(J)e^{-E(J)/KT}} \right] \cdot N, \dots \quad (8)$$

对于 CO_2 激光泵浦的仲氢受激拉曼散射跃迁, 只涉及仲氢的 $J_1 = 0$ 和 $J_2 = 2$ 两个能级。因此, 上式中的求和应对 $J_1 = 0$ 和 $J_2 = 2$ 进行, 即为:

$$\sum_{J=J_1, J_2} g(J)e^{-E(J)/KT} = g_{(0)}e^{-E(0)/KT} + g_{(2)}e^{-E(2)/KT}, \quad (9)$$

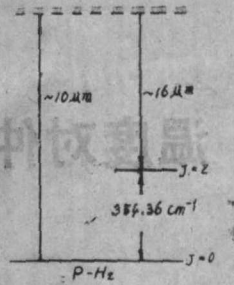


图1 仲氢的能级图

图中示出了拉曼散射的频率关系。

将(9)式代入(8)式,并注意到由(5)式可得:

$$g_{(0)} = g_n, \quad g_{(2)} = 5g_n,$$

整理后,得到如下形式的密度差表达式:

$$\Delta N = \left[1 - \frac{e^{(E_{(2)} - E_{(0)})/kT} + 5}{6} \right] \cdot N, \quad (10)$$

上式反映了仲氢的 $J_1 = 0$ 和 $J_2 = 2$ 两能级间粒子数密度差随温度的变化情况。显而易见,这个关系式是简单明了的。从(10)式很容易看出,随温度的降低 $J_1 = 0$ 能级上的粒子数密度与 $J_2 = 2$ 能级上的粒子数密度差 ΔN 越来越大。在(10)式中,拉曼散射跃迁的两能级是以其能量差 $(E_{(2)} - E_{(0)})$ 的形式出现的。这个能量差正对应着仲氢的 $S_0(0)$ 转动拉曼散射的拉曼位移 (354.36cm^{-1}) 。这样就使问题的处理得到简化,并且所表达的物理意义也一目了然。与其它的处理方法相比^(1,2),利用(10)式,就避免了其它方法依靠分子的常数来计算转动能级能量的复杂性。直接利用拉曼位移,既简单,又直观。

根据(1)、(2)两式,拉曼散射增益 α 与 ΔN 成正比。将(1)、(2)和(10)式结合,得到拉曼增益与仲氢气体温度的关系为:

$$\alpha = A \cdot N \left[1 - \frac{e^{(E_{(2)} - E_{(0)})/kT} + 5}{6} \right], \quad (11)$$

其中

$$A = \frac{4P_p}{\lambda_p + \lambda_s} \tan^{-1}(L/b) \frac{8\pi^2 \omega_s}{5C^2 n_s^2} \cdot \frac{(J+1)(J+2)r^2}{(2J+1)(2J+3)\hbar\Gamma}$$

A 的各参数与仲氢的温度无关。当泵浦光功率、仲氢压力(密度)、以及拉曼多程池不变时, A 为常量。式(11)将拉曼增益与温度联系起来,随着温度降低,拉曼增益逐渐提高。因此在同样的泵浦功率和仲氢压力等条件下,依靠降低仲氢气体的温度,可以达到提高拉曼激光器输出功率的目的。

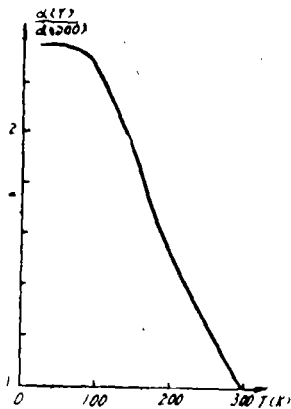


图2 拉曼增益与仲氢温度的关系曲线。

用(11)式,在泵浦光功率和仲氢压力等参量不变时,计算了对300K归一化的拉曼增益随温度的变化情况。温度变化范围从20K直到300K,变化间隔为5K。计算结果在图2示出。图2中,纵坐标为对300K时的拉曼增益归一化的增益值。从图2曲线可以看出,从室温(300K)开始,随温度的降低,拉曼增益迅速增加。液氮温度时的增益约为室温时的2.3倍。这表明,仲氢气体的温度,对拉曼激光器的增益(因而对输出功率)具有相当大的影响。由曲线看出,在液氮温度以下,拉曼增益基本不随温度变化,呈现饱和的趋势。这告诉我们,仲氢拉曼激光器没有必要追求比液氮更低的工作温度。从液氮到100K,拉曼增益比室温时高两倍。因此可以认为这个温度区间是仲氢拉曼激光器比较适宜的工作区间。在此温区工作,拉曼激光器可望获得较高的输出功率。这个结果为确定激光器的工作温度,选择致冷剂提供了依据。

三、最佳传输次数与温度的关系

仲氢受激拉曼激光器采用多程池 (MPC) 式的腔结构。为了提高拉曼转换效率, 借助于多程池的两个反射镜, 增加泵浦光在多程池中的传输次数。实质上是增加了拉曼散射的相互作用距离。研究指出^[1], 多程池结构的拉曼激光器的输出功率由下式决定:

$$P_{s,0} = \frac{R^{n-1} P_{p,0} e^{\alpha \left(\frac{1-R^n}{1-R} \right)}}{1 + \frac{\lambda_s P_{s,0}}{\lambda_p P_{p,0}} \left[e^{\alpha \left(\frac{1-R^n}{1-R} \right)} - 1 \right]}, \quad (12)$$

当拉曼增益较大, 即满足条件

$$\exp \alpha \left(\frac{1-R^n}{1-R} \right) \gg P_{p,0} / P_{s,0}, \quad (13)$$

时, (12) 式可简化为:

$$P_{s,0} = R^{n-1} \cdot \frac{\lambda_p}{\lambda_s} P_{p,0}, \quad (14)$$

其中, R 为反射镜的反射率, n 为光在多程池中的传输次数, $P_{p,0}$ 为泵浦光的初始功率。

(14) 式表明, 泵浦光除了反射损失之外, 其余全部转换为拉曼光。这时, 如果再增加传输次数, 不仅不能增加拉曼输出功率, 反而因反射损失而使输出功率降低。事实上, 泵浦光在多程池中的传输次数有一个最佳值。这个最佳传输次数由下式给出:

$$n = \ln \left\{ 1 - \frac{1-R}{\alpha} \ln \left[\frac{R \lambda_p P_{p,0}}{(1-R) \lambda_s P_{s,0}} \right] \right\} / \ln R, \quad (15)$$

就提高输出功率而言, 最佳传输次数越小越好。这一点很容易从 (14) 式看出。当其它条件一定时, n 越小, 因反射损失造成的功率损失越小。所以输出功率随 n 减小而增加。应当指出, 反射损失不仅对泵浦光而言, 已经产生的拉曼光同样也存在着反射损失。总之, 对多程池式的拉曼激光器, 减少最佳传输次数对提高其输出功率是完全必要的。除此而外, 较少的最佳传输次数, 对减小多程池的体积和顺利调光都带来方便。

在上一节得到的关系式 (10), 可以讨论温度对最佳传输次数的影响。在其它条件相同时, 对不同温度 T_1 和 T_2 来说, 它们的拉曼增益之比为:

$$\frac{\alpha(T_1)}{\alpha(T_2)} = \frac{G(T_1)}{G(T_2)} = \frac{\Delta N(T_1)}{\Delta N(T_2)}, \quad (16)$$

在 77K 时, 仲氢气体的平面波增益系数 $G(77) = 9.6 \times 10^{-5} \text{cm/MW}$ 。于是, 由 (1) 式便可算得 77K 时的拉曼增益 $\alpha(77)$ 。将 $\alpha(77)$ 的值代入 (15) 式, 就得到 77K 时的最佳传输次数 $n(77)$ 。现在, 用 (10) 式及 (16) 式, 根据 $\alpha(77)$ 的值求得任何温度 T 时的 $\alpha(T)$ 值。再由 (15) 式就可算得任何温度 T 时的最佳传输次数 $n(T)$ 。计算中各参数的取值如下:

$$R = 98.5\%$$

$$P_{p,0} = 10^{-12} \text{W}$$

$$\lambda_p = 10.59 \mu\text{m},$$

$$\lambda_s = 16.95 \mu\text{m},$$

$$\tan^{-1}(L/b) \cong \frac{\pi}{2}, \quad (\text{因为 } L \gg b)$$

$$\text{拉曼频移 } \Delta\nu = 354.36 \text{ cm}^{-1}$$

泵浦功率 P_p 依次取 15 MW, 20 MW, 30 MW。取 5 K 的温度间隔, 计算了从 20 K 直到 300 K 之间的最佳传输次数。计算结果划成以 P_p 为参变量的 n 与 T 的关系曲线, 如图 3 所示。

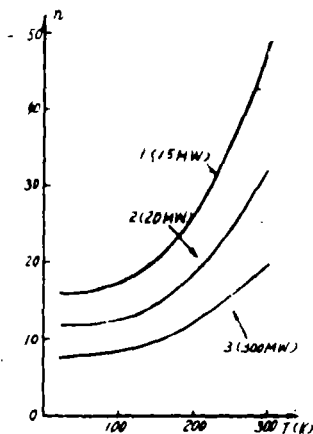


图 3 三种泵浦功率下, 最佳反射次数 n 与 T 的关系

就最佳传输次数来说, 拉曼激光器工作在液氮至 100 K 的温区也就足够了。

图 3 的三条曲线表明, 泵浦功率越大, 达到完全转换所需的最佳传输次数越少。同时, 泵浦功率越小, 低温的影响越明显, 即最佳传输次数随仲氢温度的变化幅度越大 (曲线斜率越大)。其原因在于, 总的拉曼增益不仅与仲氢温度有关, 而且与泵浦功率有关 (见 (1) 式)。泵浦功率越大, 拉曼增益越大, 仲氢温度越低, 拉曼增益也越大。相对地说, 当泵浦功率较小时, 低温的作用显得明显些, 如曲线 1。

综上所述, 在设计仲氢拉曼激光器时, 考虑到仲氢温度的影响, 可以采用较少的传输次数获得较高的拉曼转换效率。

在研制的仲氢拉曼激光器中, 采用导热性能较好的铜管作为传热体, 用液氮做致冷剂, 仲氢气体的工作温度在 90—100 K。我们所进行的受激拉曼转换实验表明, 量子转换效率达 21%, 拉曼激光的单脉冲输出能量为 536 mJ。

四、结 论

推导了一个简明的粒子数密度差与温度的关系式。利用该关系式讨论了温度对仲氢拉曼激光器工作的影响。结果表明, 仲氢拉曼激光器在低温下工作, 对于获得较高的拉曼增益, 减少最佳传输次数都是有效的。分析指出, 80~100 K 是仲氢拉曼激光器较适宜的工作温度范围。更低的温度, 拉曼增益和最佳反射次数均出现饱和, 因此不必追求更低的工作温度。这个工作温度是容易获得的, 用液氮致冷足以满足。

参 考 文 献

- [1] 金春植、李殿军,《光学机械》 No6,19 (1985),
- [2] P·P·Sorokin, M·M·T·Loy, ナド., IEEE, QE-13, 871 (1977)
- [3] 田代英夫, 绿川克美, ナド; レーザー研究, 第13卷, 第3号, 76 (1985)
- [4] J.L. Carlsten, R.G. Wenzel; IEEE, QE-19, 1407 (1983)

Effect of Temperature on P-H₂ Stimulated Raman Scattering

Jin Chunzhi Ding Yishan

Abstract

In this paper temperature effect on P-H₂ stimulated Raman Scattering is presented. A concise relation between the population density difference and the temperature is derived. The result calculated by the relation shows that the optimum tuning temperature of the p-H₂ Raman laser is the liquid nitrogen (L-N₂) temperature. When the working temperature is lower than the optimum one, Raman gain saturation is shown. In terms of this relation, the dependence of the laser optimum pass numbers in a Multiple-pass Cell (MPC) on the temperature is discussed. For increasing Raman gain and decreasing pass numbers, an effective way is to lower the temperature.