

Оценка перспектив возбуждения активной среды Xe_2Cl лазерным излучением для усиления фемтосекундных импульсов

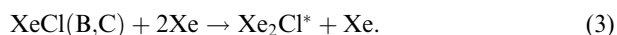
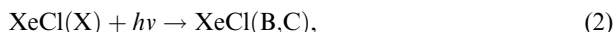
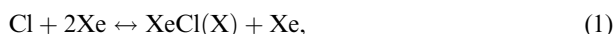
Л.Д.Михеев

Рассмотрена возможность возбуждения активной лазерной среды Xe_2Cl , образующейся в результате фотоассоциации $\text{Xe} + \text{Cl} + h\nu \rightarrow \text{XeCl}(\text{B})$ при поглощении излучения XeCl -лазера ($\lambda = 308$ нм) с последующей трехчастичной рекомбинацией в $\text{Xe}_2\text{Cl}(4^2\text{Г})$. Оценены основные параметры накачки, которые определяют коэффициент усиления малого сигнала, представляющий практический интерес для усиления фемтосекундных импульсов.

Ключевые слова: фотоассоциация, активные лазерные среды, усилители фемтосекундных импульсов.

Широкополосные активные среды фотохимических лазеров на переходах $\text{Kr}_2\text{F}(4^2\text{Г}-1, 2^2\text{Г}, \lambda = 405$ нм), $\text{Xe}_2\text{Cl}(4^2\text{Г}-1, 2^2\text{Г}, \lambda = 490$ нм) и $\text{XeF}(\text{C}-\text{A}, \lambda = 485$ нм) привлекательны с точки зрения их использования для усиления фемтосекундных импульсов в гибридных лазерных системах [1, 2]. В основе данного подхода лежит идея усиления в указанных средах излучения титан-сапфирового лазера, преобразованного методами нелинейной оптики (например, за счет удвоения частоты) в нужный спектральный диапазон [3]. Это позволяет на несколько порядков увеличить контраст излучения титан-сапфировых систем на мультитераваттном уровне мощности. В настоящее время получил развитие фотохимический метод возбуждения данных сред при оптической накачке ВУФ излучением открытых разрядов (см., напр., [2, 4]), и на его основе созданы усилители фемтосекундных оптических импульсов [3, 5, 6].

В данной работе рассматривается альтернативный подход, состоящий в оптическом возбуждении активной среды Xe_2Cl^* лазерным излучением. Суть этого метода заключается в фотоассоциативном возбуждении В-состояния XeCl при поглощении излучения XeCl -лазера с $\lambda = 308$ нм основным слабосвязанным состоянием $\text{XeCl}(\text{X})$ и в последующей рекомбинации $\text{XeCl}(\text{B})$ с ксеноном, которая ведет к образованию Xe_2Cl^* . Достаточная для реализации данного подхода концентрация $\text{XeCl}(\text{X})$ может быть получена в смеси $\text{Xe}-\text{Cl}$, в которой атомарный хлор при концентрации $10^{16} - 10^{17}$ см⁻³ образуется электро-разрядным, электронно-пучковым или оптическим способом. Это эффективно происходит, например, в смеси Cl_2 с ксеноном. Рассматриваемый механизм возбуждения описывается следующими реакциями:



Из литературы известны константы скорости диссоциации молекул $\text{XeCl}(\text{X})$ ($k_{-1} = 5.6 \times 10^{-12}$ см³·с⁻¹ [7]) и рекомбинации $\text{XeCl}(\text{B}, \text{C})$ с ксеноном ($k_3 = 1.3 \times 10^{-30}$ см⁶·с⁻¹ [8]), а также сечение перехода $\text{XeCl}(\text{X} \rightarrow \text{B})$ ($\sigma_1 = 2.6 \times 10^{-16}$ см² [9]). Константу скорости рекомбинации k_1 атомов хлора и ксенона можно получить, оценив константу равновесия K_b между связанным и свободным состояниями атомов хлора и ксенона из принципа детального равновесия по формуле [10]

$$K_b = \frac{g_{\text{RG}}}{g_{\text{RG}}g_{\text{G}}} h r_e^2 \left(\frac{8\pi}{kT\mu} \right)^{1/2} \left[1 - \exp\left(-\frac{hc\omega_e}{kT} \right) \right]^{-1} \exp\left(\frac{D_e}{kT} \right),$$

где $g_{\text{RG}}/g_{\text{RG}}g_{\text{G}} = 1/2$ – отношение статистических весов в связанном и свободном состояниях атомов ($\text{RG} = \text{XeCl}$, $\text{R} = \text{Xe}$, $\text{G} = \text{Cl}$); $r_e = 3.23$ Å [11] – равновесное межъядерное расстояние в $\text{XeCl}(\text{X})$; $\mu = 4.7 \times 10^{-23}$ г – приведенная масса молекулы; $\omega_e = 26.2$ см⁻¹ [11] – колебательная частота; $D_e = 281$ см⁻¹ [11] – энергия диссоциации молекулы. При комнатной температуре $K_b(\text{XeCl}) \approx 4 \times 10^{-22}$ см³. Отсюда константа скорости рекомбинации $k_1 = 2.2 \times 10^{-33}$ см⁶·с⁻¹.

Если скорость обеднения $\text{XeCl}(\text{X})$ -состояния вследствие накачки превышает скорость его диссоциации, то скорость возбуждения $\text{XeCl}(\text{B}, \text{C})$ определяется скоростью рекомбинации атомов хлора (1). Для этого при давлении Xe около 1 атм, обеспечивающем близкую к максимальной эффективность образования Xe_2Cl^* [12], необходимо поддерживать плотность потока фотонов накачки I на уровне, превышающем $k_{-1}[\text{Xe}]/\sigma_1 = 5.4 \times 10^{23}$ фот.·см⁻²·с⁻¹, где $[\text{Xe}] = 2.5 \times 10^{19}$ см⁻³ – концентрация атомов ксенона.

Возьмем для определенности концентрацию атомов хлора $[\text{Cl}] = 10^{16}$ см⁻³, при которой скорость тушения Xe_2Cl^* атомарным хлором сравнительно невелика и сравнима со скоростью радиационного распада Xe_2Cl^* , если принять константу скорости тушения Xe_2Cl^* атомарным хлором равной соответствующему значению для молекулярного хлора 4×10^{-10} см³·с⁻¹ [13]. Тогда, пренебрегая потерями за счет тушения и радиационного распада

Л.Д.Михеев. Физический институт им. П.Н.Лебедева РАН, Россия, 119991 Москва, Ленинский просп. 53; e-mail: mikheev@sci.lebedev.ru

Поступила в редакцию 10 августа 2005 г.

возбужденных состояний, можно оценить концентрацию $k_1[\text{Xe}]^2[\text{Cl}]\tau_p$ эксимеров Xe₂Cl*, которая, например, при длительности импульса накачки $\tau_p = 10^{-7}$ с составляет $\sim 1.4 \times 10^{15} \text{ см}^{-3}$. При сечении индуцированного перехода Xe₂Cl(4²Г → 1, 2²Г) $\sigma_{st} = \lambda^4 / (8\pi c \tau_{2sp} \Delta\lambda) = 3.5 \times 10^{-18} \text{ см}^2$ ($\tau_{2sp} = 242$ нс – радиационное время жизни Xe₂Cl*, $\Delta\lambda = 80$ нм – ширина полосы усиления [14]) соответствующий коэффициент усиления малого сигнала k_g в среде составляет $\sim 5 \times 10^{-3} \text{ см}^{-1}$. В рассматриваемых условиях в связанном состоянии находится около 1 % атомов хлора, что обеспечивает поглощение фотонов накачки на длине около 40 см, удобной для реализации продольной схемы накачки усилителя.

Практически такие же результаты получены при более точном решении скоростных уравнений при стационарной накачке и стационарном профиле распределения ХеСl(X) вдоль направления распространения пучка накачки, который устанавливается за время $\sim (\sigma_1 I)^{-1}$. Возьмем для определенности Cl₂ в качестве донора атомарного хлора и предположим, что при приготовлении исходной смеси Хе–Сl указанными выше способами молекулярный хлор разлагается настолько, что уже не оказывает существенного влияния на релаксацию возбужденных состояний. Тогда полная схема кинетических процессов при лазерном возбуждении смеси Хе–Сl может быть описана следующими скоростными уравнениями:

$$\frac{dn_1^*}{dt} = \sigma_1 I n_1 - k_3 n_1^* N^2 - n_1^* \tau_1^{-1}, \quad (4)$$

$$\frac{dn_1}{dt} = k_1 m N^2 - k_{-1} n_1 N - \sigma_1 I n_1 + n_1^* \tau_1^{-1}, \quad (5)$$

$$\frac{dn_2^*}{dt} = k_3 n_1^* N^2 - n_2^* \tau_2^{-1}. \quad (6)$$

Здесь принято во внимание, что состояние ХеСl(C) находится всего лишь на 98 см⁻¹ ниже состояния ХеСl(B) [8], и в рассматриваемых условиях из-за сильного столкновительного перемешивания эти состояния могут рассматриваться как одно состояние ХеСl(B,C) с радиационным временем жизни $\tau_{1sp} = 25$ нс [8]. В состоянии равновесия отношение населенностей ХеСl(C) и ХеСl(B) составляет 1.6 [8]. Для простоты предполагается, что при тушении молекулы ХеСl(B,C) переходят в основное состояние. В приведенных скоростных уравнениях n_1^* , n_1 , n_2^* , N и m – концентрации ХеСl(B,C), ХеСl(X), Хе₂Cl*, Хе и Сl соответственно; $\tau_1^{-1} = \sigma_1 I (n_{1B}^*/n_1^*) + k_{1m} m + (\tau_{1sp})^{-1} + k_{1N} N$ – скорость распада ХеСl(B,C) за счет паразитных процессов тушения атомарным хлором и ксеноном, а также спонтанного и индуцированного излучения в основное состояние; n_{1B}^* – концентрация ХеСl(B); k_{1m} – константа скорости тушения ХеСl(B,C) атомарным хлором, принятая равной соответствующему значению для молекулярного хлора $4.3 \times 10^{-10} \text{ см}^3 \cdot \text{с}^{-1}$ [15]; $k_{1N} = 5 \times 10^{-12} \text{ см}^3 \cdot \text{с}^{-1}$ – константа скорости тушения ксеноном [8]; $\tau_2^{-1} = k_{2m} m + \sigma_2 I + (\tau_{2sp})^{-1}$ – скорость распада Хе₂Cl* за счет тушения атомарным хлором, поглощения излучения накачки трехатомными эксимерами и их радиационного распада (константа скорости k_{2m} принята равной соответствующему значению для молекулярного хлора $4 \times 10^{-10} \text{ см}^3 \cdot \text{с}^{-1}$ [13], сечение поглощения $\sigma_2 = 1.3 \times 10^{-17} \text{ см}^2$ [16]).

При длительности накачки $\sim 10^{-7}$ с, существенно превышающей характерные времена всех учтенных процессов, кроме τ_2 , можно положить $dn_1^*/dt = dn_1/dt = 0$.

Тогда решение уравнений (4)–(6) относительно n_2^* имеет следующий вид:

$$n_2^* = \frac{\alpha k_3 k_1 m N^4 \tau_2}{\tau_1^{-1} + (1 + \alpha) k_3 N^2} [1 - \exp(-t/\tau_2)],$$

где $\alpha = \sigma_1 I (k_{-1} N)^{-1}$ – параметр превышения скорости возбуждения ХеСl над скоростью диссоциации ХеСl(X).

В качестве примера рассмотрим случай смеси Хе–Сl при давлении 1.5 атм и концентрации атомарного хлора $5 \times 10^{16} \text{ см}^{-3}$; смесь возбуждается излучением ХеСl-лазера длительностью 10^{-7} с, обеспечиваемым $\alpha = 2$. В данных условиях $I = 1.6 \times 10^{24} \text{ фот} \cdot \text{см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$, $\tau_1^{-1} = 4.1 \times 10^8 \text{ с}^{-1}$, $\tau_2^{-1} = 4.5 \times 10^7 \text{ с}^{-1}$, $n_2^* = 2 \times 10^{15} \text{ см}^{-3}$ и $k_g = 7 \times 10^{-3} \text{ см}^{-1}$. При этом вдоль распространения излучения накачки коэффициент усиления меняется незначительно. Так, в сечении, в котором поток излучения уменьшается в e раз, коэффициент усиления составляет $\sim 5.5 \times 10^{-3} \text{ см}^{-1}$. Это обусловлено увеличением населенности ХеСl(X)-состояния и уменьшением скорости разрушения Хе₂Cl* излучением накачки по мере падения потока этого излучения.

Полученное значение k_g значительно превышает коэффициент усиления малого сигнала, достигнутый в настоящее время в фотохимическом ХеF(C–A)-усилителе ($2 \times 10^{-3} \text{ см}^{-1}$ [5, 6]), и свидетельствует о перспективности данного метода возбуждения активной среды Хе₂Cl*. Важным преимуществом этой среды является также более широкая полоса усиления и в 3 раза более высокая плотность энергии насыщения на рабочем переходе (0.15 Дж/см²), определяющая выходную энергию с единицы площади апертуры усилителя.

Основным достоинством оптического возбуждения газообразных активных сред является отсутствие характерного для электронной накачки наведенного поглощения, которое уменьшает эффективную ширину полосы усиления. При рассматриваемом методе возбуждения Хе₂Cl это преимущество легко реализуется, поскольку даже в случае электроразрядного или электронно-пучкового способа получения атомарного хлора характерные времена рекомбинации плазмы значительно меньше времени рекомбинации атомов хлора, составляющего в рассматриваемых условиях $\sim 10^{-4}$ с.

Что касается способов получения необходимых концентраций атомарного хлора, то наиболее очевидной на сегодняшний день является возможность использования электронного пучка и оптической накачки, хотя последняя энергетически на порядок менее эффективна. Однако с точки зрения технической простоты и компактности наиболее привлекательным является электроразрядный способ. Проблема состоит лишь в том, что получение однородного разряда, занимающего объем ~ 1 л, в смеси с большим содержанием ксенона является задачей непростой и требует разработки специальных методов организации такого разряда.

Фотоассоциация столкновительных пар, в частности атомов ксенона и хлора, сравнительно давно используется для спектрально-кинетических исследований (см., напр., [13, 16–18]). Приведенные выше оценки показывают, что данный метод может иметь также практическое значение, позволяя возбуждать активные лазерные среды, в частности для создания усилителей фемтосекундных импульсов с целью получения высококонтрастного фемтосекундного излучения на мультитераваттном

уровне мощности для применений в области физики сверхсильных лазерных полей.

Что касается двух других упомянутых в начале статьи переходов – Kr_2F ($4^2\text{Г} - 1, 2^2\text{Г}$) и XeF ($\text{C} - \text{A}$), то их ассоциативное возбуждение в смесях криптона или ксенона со фтором (соответственно с последующей трехчастичной рекомбинацией $\text{KrF}(\text{B})$ в Kr_2F или столкновительной релаксацией $\text{XeF}(\text{B})$ в C -состояние) является малопродуктивным, поскольку KrF не обладает связанным основным состоянием, а в случае XeF C -состояние сильно тушится ксеноном (константа скорости тушения составляет $1.2 \times 10^{-10} \text{ см}^3 \cdot \text{с}^{-1}$ [19]). Однако наличие у $\text{XeF}(\text{X})$ довольно значительной (1175 см^{-1} [20]) энергии связи, наибольшей среди двухатомных галогенидов благородных газов, дает возможность реализовать другие способы возбуждения перехода $\text{XeF}(\text{C} - \text{A})$. Дело в том, что благодаря большой энергии связи время жизни молекулы $\text{XeF}(\text{X})$ при атмосферном давлении составляет около 10^{-7} с (константа скорости диссоциации равна $1.1 \times 10^{-11} \text{ см}^3 \cdot \text{с}^{-1}$ [21]). Это позволяет получать $\text{XeF}(\text{X})$ в быстром разряде или под действием электронного пучка с последующим оптическим возбуждением в B -состояние излучением эксимерного XeF -лазера с задержкой по времени, достаточной для релаксации ответственных за наведенное поглощение состояний.

Также представляет интерес получение XeF в основном состоянии при фотодиссоциации XeF_2 излучением ArF - или KrF -лазера. При этом молекулы $\text{XeF}(\text{X})$ образуются главным образом на колебательных уровнях $\nu'' = 3, 4$ [22], которые являются нижними уровнями лазерного перехода XeF ($\text{B} - \text{X}$). Это обстоятельство в значительной степени компенсирует более высокие энергетические затраты, характерные для оптического способа получения $\text{XeF}(\text{X})$. Для оценки перспектив лазерного возбуждения активной среды на переходе $\text{XeF}(\text{C} - \text{A})$ с целью получения коэффициента усиления, предста-

вляющего практический интерес для усиления фемтосекундных импульсов, требуется более детальный анализ предложенных способов накачки.

1. Mikheev L.D. *Laser Particle Beams*, **10**, 473 (1992).
2. Михеев Л.Д. *Квантовая электроника*, **32**, 1122 (2002).
3. Малиновский Г.Я., Мамаев С.Б., Михеев Л.Д., Москалев Т.Ю., Сентис М.Л., Черемискин В.И., Яловой В.И. *Квантовая электроника*, **31**, 617 (2001).
4. Zuev V.S., Mikheev L.D. *Photochemical Lasers* (Chur, Switzerland: Harwood Acad. Publ., 1991).
5. Tcheremiskine V.I., Sentsis M.L., Mikheev L.D. *Appl. Phys. Lett.*, **81**, 403 (2002).
6. Mikheev L., Levtchenko K., Mamaev S., Mislavskii V., Moskalev T., Sentsis M., Shirokikh A., Tcheremiskine V., Yalovoi V. *Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng.*, **5448**, 384 (2004).
7. Waynant R.W., Eden J.G. *Appl. Phys. Lett.*, **36**, 262 (1980).
8. Quinones E., Yu Y.C., Setser D.W., Lo G. *J. Chem. Phys.*, **93**, 333 (1990).
9. Corcum P.B., Taulor R.S. *IEEE J. Quantum Electron.*, **18**, 1962 (1982).
10. Мельвин-Хьюз Э.-А. *Физическая химия* (М.: ИЛ, 1962, т. 2).
11. Sur A., Hui A.K., Tellinghuisen J. *J. Mol. Spectr.*, **74**, 465 (1979).
12. Зуев В.С., Канаев А.В., Михеев Л.Д. *Квантовая электроника*, **14**, 1397 (1987).
13. McCown A.W., Eden J.G. *J. Chem. Phys.*, **81**, 2933 (1984).
14. Yu Y.C., Wategaonkar S.J., Setser D.W. *J. Chem. Phys.*, **96**, 8914 (1992).
15. Inoue G., Ku J.K., Setser D.W. *J. Chem. Phys.*, **80**, 6006 (1984).
16. McCown A.W., Ediger M.N., Geohagan D.B., Eden J.G. *J. Chem. Phys.*, **82**, 4862 (1985).
17. Eden J.G., Jones R.B., Zuev V.S. *J. Russ. Laser Res.*, **20**, 399 (1999).
18. Зуев В.С., Иден Д.Г., Гран Х.С. *Молекулярная спектроскопия*, **90**, 586 (2001).
19. Sauerbrey R., Walter W., Tittel F.K., Wilson W.L., Jr. *J. Chem. Phys.*, **78**, 735 (1983).
20. Tellinghuisen P.C., Tellinghuisen J. *J. Chem. Phys.*, **68**, 5187 (1978).
21. Bott J.F., Heidner R.F., Holloway J.S., Koffend J.B., Kwok M.A. *J. Chem. Phys.*, **89**, 4154 (1988).
22. Helm H., Jusinski L.E., Lorents D.C., Huestis D.L. *J. Chem. Phys.*, **80**, 1796 (1984).