

АКТИВНЫЕ СРЕДЫ

Измерение коэффициента усиления активной среды Xe_2Cl^* с оптической накачкой

С.Б.Мамаев, Л.Д.Михеев, Е.В.Поляков, А.А.Рогашевский, А.П.Широких, В.И.Яловой

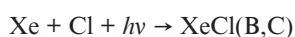
Впервые наблюдалось усиление при оптическом возбуждении газовой смеси $\text{Cl}_2\text{-Xe}$ излучением XeCl -лазера (308 нм), которое приводило к фотоассоциации $\text{Xe} + \text{Cl} + h\nu \rightarrow \text{XeCl}(\text{B,C})$, сопровождающейся образованием активной среды Xe_2Cl^* при рекомбинации $\text{XeCl}(\text{B,C})$ с Xe . Измерен коэффициент усиления малого сигнала на длине волны 532 нм в смеси Cl_2 (1 мм рт. ст.) с Xe (2 атм), составивший $(1.1 \pm 0.3) \times 10^{-3} \text{ см}^{-1}$ в активном объеме размером $0.5 \times 1 \times 80 \text{ см}$ при энергии возбуждения 170 мДж в импульсе длительностью 60 нс. В пересчете на максимум полосы усиления Xe_2Cl^* , находящийся на длине волны 504 нм, коэффициент усиления достигал $(1.3 \pm 0.3) \times 10^{-3} \text{ см}^{-1}$. Обсуждаются перспективы дальнейшего развития данного метода возбуждения активной среды Xe_2Cl^* .

Ключевые слова: фотоассоциация, активные лазерные среды, петаваттные системы, видимый спектральный диапазон.

1. Введение

Широкополосные активные среды фотохимических лазеров, такие как $\text{XeF}(\text{C-A})$, Kr_2F , Xe_2Cl , представляют значительный интерес для усиления фемтосекундных импульсов в гибридных лазерных системах [1–4]. Активная среда Xe_2Cl особенно привлекательна для усиления таких импульсов до высокой пиковой мощности благодаря широкой (100 нм) полосе усиления в спектральной области 500 нм и большому (250 нс) времени жизни возбужденного состояния. Кроме того, при оптической накачке рабочей смеси хлора и ксенона можно реализовать импульсно-периодический режим работы без смены рабочей смеси.

Суть рассматриваемого метода фотохимического возбуждения активной среды Xe_2Cl состоит в фотоассоциативном поглощении при ее возбуждении в области 308 нм:



и в последующей трехтельной рекомбинации



Впервые усиление малого сигнала и лазерная генерация в активной среде Xe_2Cl^* наблюдались при накачке смеси $\text{CCl}_4\text{-Xe-Ar}$ электронным пучком [5], однако вследствие наведенного поглощения в плазме, образующейся при воздействии электронного пучка, усиление возникало лишь в послесвечении после окончания действия накачки. Усиление малого сигнала на длине волны

514.5 нм достигало 6% на проход, или около $3 \times 10^{-2} \text{ см}^{-1}$. Наличие наведенного поглощения приводило также к сужению спектральной полосы усиления, что снижало потенциальные возможности активной среды для усиления фемтосекундных импульсов.

При оптическом возбуждении, которое практически лишено недостатков, обусловленных наведенным поглощением, лазерная генерация в Xe_2Cl^* впервые наблюдалась в работе [6]. Смесь молекулярного хлора с ксеноном и азотом возбуждалась излучением открытого сильноточного разряда, инициируемого электрическим взрывом тонкой вольфрамовой проволоки.

Люминесценция и усиление наблюдались также в жидкой и твердой фазах смеси $\text{Cl}_2\text{-Xe}$ при оптическом возбуждении на длине волны 308 нм [7, 8]. При плотности накачки $2.1 \times 10^{17} \text{ фотон} \cdot \text{см}^{-3}$ усиление составляло 11% на проход, или около 0.15 см^{-1} , в жидкой фазе [7] и 13 см^{-1} в слое толщиной 200 мкм твердой фазы [8]. В работе [9] сделана оценка перспектив возбуждения газовой активной среды Xe_2Cl^* излучением XeCl -лазера для усиления фемтосекундных импульсов и рассчитан возможный коэффициент усиления малого сигнала в этой среде.

В настоящей работе представлены результаты исследования усилительных свойств активной среды Xe_2Cl^* при оптическом возбуждении в области 308 нм и измерен коэффициент усиления малого сигнала на длине волны 532 нм.

2. Экспериментальные результаты и их обсуждение

Оптическая схема экспериментальной установки представлена на рис.1. Рабочая смесь, состоявшая из хлора и ксенона, находилась в кювете 15 длиной 80 см и диаметром 2.5 см. Давление хлора изменялось в пределах 0.5–10 мм рт. ст., ксенона – 0.5–2 атм. Максимальное давление 2 атм обусловлено механической прочностью кюветы. Молекулярный хлор являлся донором атомарного хлора, образующегося в результате фотолиза под действием лазерного излучения.

С.Б.Мамаев, Е.В.Поляков, А.А.Рогашевский, А.П.Широких, В.И.Яловой. Физический институт им. П.Н.Лебедева РАН, Россия, 119991 Москва, Ленинский просп., 53; e-mail: alsir44@mail.ru
Л.Д.Михеев. Физический институт им. П.Н.Лебедева РАН, Россия, 119991 Москва, Ленинский просп., 53; Национальный исследовательский ядерный университет «МИФИ», Россия, 115409 Москва, Каширское ш., 31

Поступила в редакцию 10 мая 2017 г.

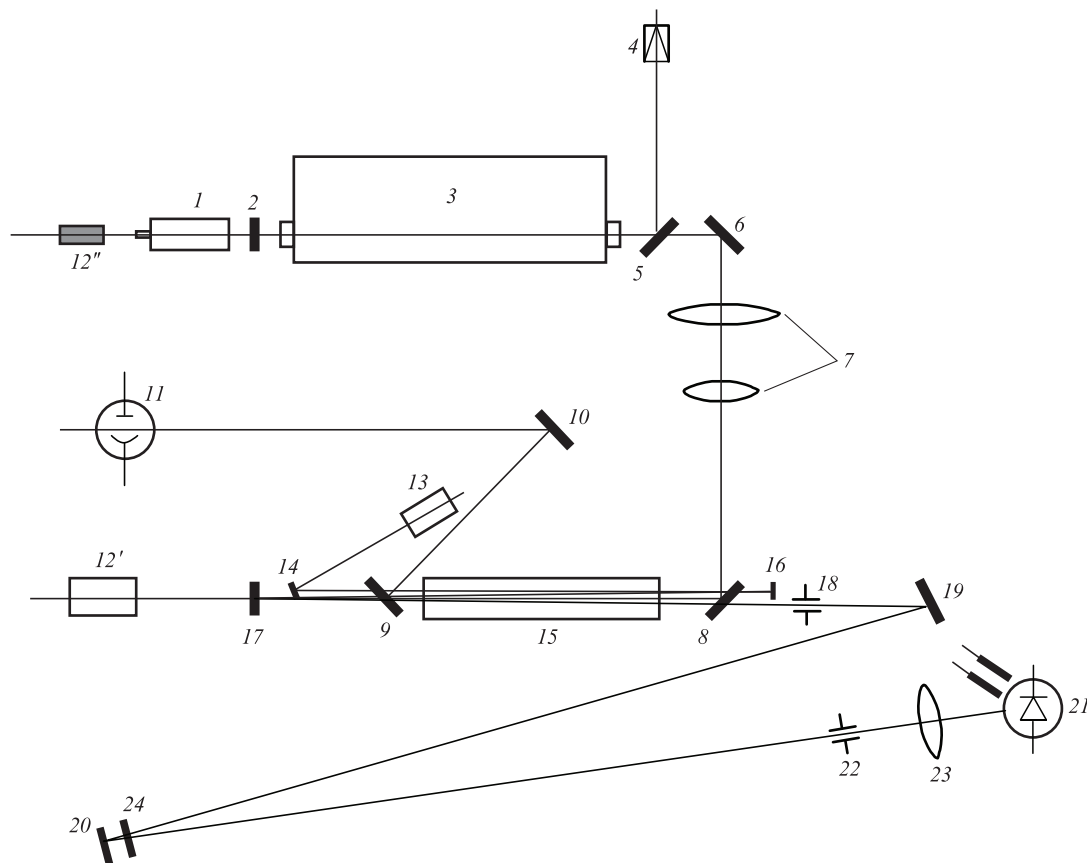


Рис.1. Оптическая схема экспериментов:

1 – коллиматор; 2, 6, 8–10 – диэлектрические зеркала на длину волны 308 нм; 3 – лазер накачки (XeCl-лазер); 4 – калориметр; 5 – кварцевая пластина; 7 – телескоп; 11 – вакуумный фотоэлемент ФЭК; 12', 12'' – юстировочные лазеры; 13 – зондирующий лазер с длиной волны излучения 532 нм; 14, 16, 17, 19, 20 – диэлектрические зеркала на длину волны 532 нм; 15 – кювета с рабочей смесью $\text{Cl}_2\text{-Xe}$; 18, 22 – диафрагмы; 21 – фотодиод; 23 – линза; 24 – ослабляющий фильтр на 308 нм.

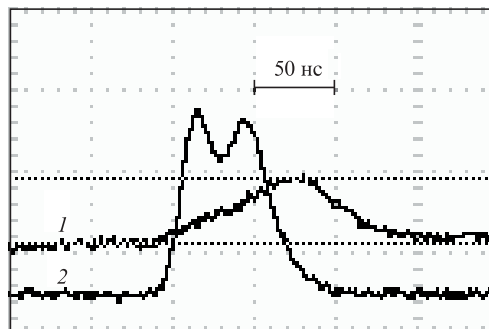
Источником возбуждения рабочей смеси служило излучение XeCl-лазера 3 на длине волны 308 нм с выходной энергией 0.35 Дж в импульсе длительностью $\tau_p \sim 60$ нс. Энергия измерялась калориметром 4, на который часть излучения накачки направлялась с помощью пластинки 5. Выходная энергия XeCl-лазера от импульса к импульсу изменялась не более чем на 10%.

В экспериментах использовалась схема продольной накачки усиливающей среды. Для увеличения плотности потока излучения и согласования апертур лазера и кюветы применялся телескоп 7 с четырехкратным уменьшением. При этом на входе в кювету 15 энергия накачки составляла 170 мДж, а интенсивность потока излучения в максимуме импульса накачки I_{\max} была примерно равна 10^{25} фотон $\cdot \text{см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$ в пучке прямоугольного сечения 1.0×0.5 см. Излучение накачки направлялось по оси кюветы с помощью диэлектрических зеркал 6, 8 и после отражения от зеркал 9, 10 регистрировалось фотоэлементом ФЭК 11. Степень разложения $\text{Cl}_2 \alpha \approx \sigma_p I_{\max} \tau_p$ составляла $\sim 10\%$, где $\sigma_p = 1.6 \times 10^{-19}$ см^2 – сечение поглощения Cl_2 на длине волны накачки 308 нм [10].

Импульс люминесценции рабочей среды, возникающей под действием накачки, измерялся фотодиодом 21 (DET210). Сигналы фотодиода и ФЭКа регистрировались двухлучевым цифровым осциллографом Tektronix TDS 1002. Осциллограммы импульсов люминесценции и накачки представлены на рис.2.

Начало люминесценции рабочих смесей совпадало с началом импульса накачки, но сигналы накачки и люми-

несценции имели разную форму. По сравнению с сигналом накачки сигнал люминесценции имел более затянутый передний фронт. Максимум люминесценции наблюдался на заднем фронте импульса накачки. Запаздывание максимума люминесценции относительно накачки обусловлено интегральной зависимостью образования атомарного хлора и Xe_2Cl^* от импульса накачки. Затухание люминесценции соответствует экспоненциальному закону с характерным временем 30–50 нс. Наблюдаемая скорость затухания приблизительно вдвое выше ожидаемой в предположении тушения Xe_2Cl^* молекулярным хлором с константой тушения $k_{\text{Cl}_2} = 4 \times 10^{-10}$ $\text{см}^3 \cdot \text{с}^{-1}$ [10], что может объясняться наличием в исходной рабочей смеси неконтролируемых примесей или продуктов, нарабатывае-

Рис.2. Осциллограммы импульсов люминесценции Xe_2Cl^* в смеси Cl_2 (1 мм рт.ст.) и Xe (2 атм) (1) и накачки на 308 нм (2).

мых в процессе накачки. Наибольшая интенсивность люминесценции наблюдалась при давлении хлора около 1 мм рт.ст. и увеличивалась с повышением давления ксенона вплоть до 2 атм при фиксированном давлении хлора.

При исследовании усиления активная область кюветы просвечивалась непрерывным излучением зондирующего лазера 13 на длине волны 532 нм. Мощность зондирующего пучка составляла 20 мВт, его диаметр был 2–3 мм. Пучок вводился в кювету под небольшим углом к ее оси посредством зеркала 14. В целях увеличения чувствительности метода измерения осуществлялся тройной проход зондирующего пучка по активной среде, обеспеченный с помощью зеркал 16 и 17. После отражения от зеркала 19 пучок направлялся на фотодиод 21. При этом фотодиод регистрировал сигнал усиленного зондирующего излучения вместе с сигналом люминесценции (рис.3). Система диафрагм 18 и 22 позволяла получать эти сигналы примерно одинакового уровня.

Регистрируемый сигнал амплитудой I состоит из постоянного зондирующего сигнала I_0 , приращения ΔI за счет его усиления и сигнала люминесценции I_L :

$$I = I_0 + \Delta I + I_L,$$

причем I_L определялся в эксперименте без зондирующего пучка (рис.2). Тогда полный коэффициент усиления $K = \exp(gL) = 1 + \Delta I/I_0$, где g – коэффициент усиления малого сигнала, а $L = 80$ см – длина пути распространения пучка по активной среде.

Наибольшее усиление зондирующего излучения зарегистрировано в смеси Cl_2 и Xe при давлениях 1 мм рт.ст. и 2 атм соответственно. На рис.4 представлена зависимость коэффициента усиления K от времени на длине волны 532 нм. Максимальное значение $K = 1.27$ соответствует коэффициенту усиления малого сигнала $g = (1.1 \pm 0.3) \times 10^{-3} \text{ см}^{-1}$ на указанной длине волны.

Длина волны 532 нм зондирующего излучения смещена от максимума спектральной зависимости сечения усиления в длинноволновую область. Это видно из рис.5, на котором приведены экспериментально полученный спектр люминесценции Xe_2Cl^* и рассчитанная на его основе

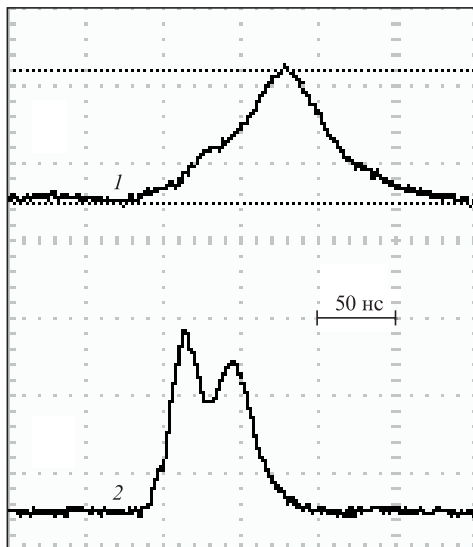


Рис.3. Осциллограммы сигнала люминесценции вместе с усиленным зондирующим излучением после трех проходов активной среды (1) и сигнала накачки (2). Смесь та же, что на рис.2.

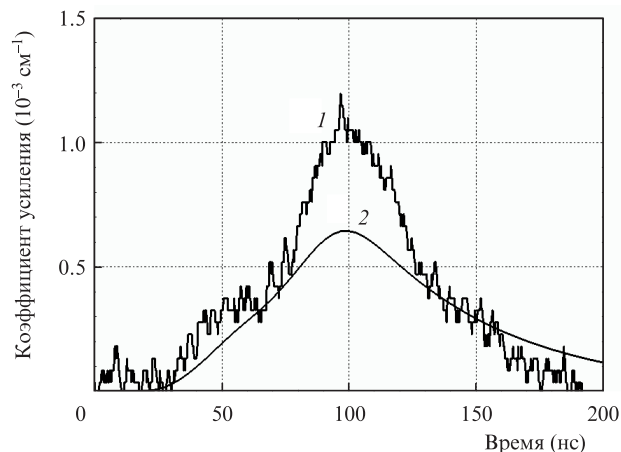


Рис.4. Зависимости измеренного (1) и рассчитанного (2) коэффициентов усиления на $\lambda = 532$ нм от времени.

спектральная зависимость сечения усиления. Спектр люминесценции построен на основании экспериментальных значений интенсивности, полученных на различных длинах волн с помощью монохроматора и фотодиода, и аппроксимации полученных значений гауссовой кривой $f(\nu) \sim \exp[-4\ln 2(\nu - \nu_0)^2/\Delta\nu^2]$, где $\Delta\nu = 4000 \text{ см}^{-1}$ ($\Delta\lambda = 100$ нм) – ширина полосы люминесценции по полувысоте. Максимум люминесценции приходится на длину волны $\lambda_0 = 496$ нм. Спектральная зависимость сечения усиления (рис.5) рассчитывалась на основе соотношения [11]:

$$\sigma_\nu = \frac{\lambda^2}{4\pi\tau c\Delta\nu} \left(\frac{\ln 2}{\pi}\right)^{1/2} f(\nu),$$

где $\tau = 245$ нс – время жизни Xe_2Cl^* [12]. Максимальное значение сечения усиления лежит на длине волны $\lambda_0 = 504$ нм и составляет $3.2 \times 10^{-18} \text{ см}^2$. Приведенная спектральная зависимость σ_ν и экспериментально полученное значение $g = (1.1 \pm 0.3) \times 10^{-3} \text{ см}^{-1}$ на длине волны 532 нм позволяют вычислить максимальное значение коэффициента усиления на длине волны $\lambda_0 = 504$ нм – $g_0 = 1.3 \times 10^{-3} \text{ см}^{-1}$ – и соответствующую ему концентрацию Xe_2Cl^* , составляющую $4.1 \times 10^{14} \text{ см}^{-3}$.

Важной характеристикой рассматриваемого механизма возбуждения активной среды Xe_2Cl^* является его эффективность, которую можно определить как отношение энергии активных молекул, запасенной в активной среде к моменту достижения максимума усиления, к поглощенной энергии импульса накачки (~ 70 мДж). Последняя

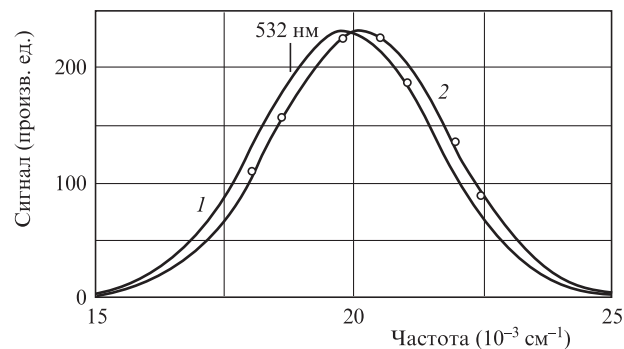


Рис.5. Экспериментальные значения интенсивности люминесценции (точки), а также рассчитанная спектральная зависимость коэффициента усиления (1) и аппроксимация спектральной зависимости интенсивности люминесценции гауссовой кривой (2).

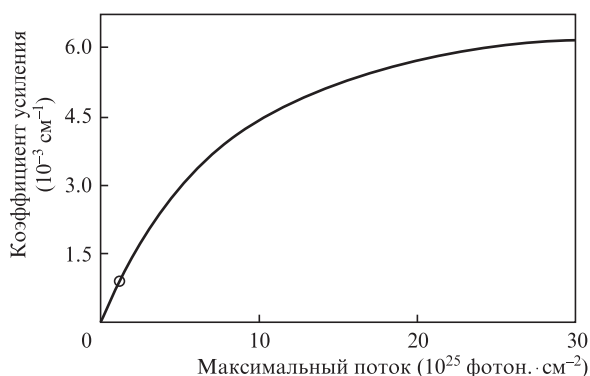


Рис.6. Расчетная зависимость максимального коэффициента усиления на длине волны 504 нм в смеси Cl_2 (1 мм рт. ст.) и Хе (2 атм) от потока фотонов для импульса накачки длительностью 60 нс. Крестиком обозначено расчетное значение для фактической накачки, использовавшейся в эксперименте.

определялась путем измерения энергий излучения лазера накачки на входе и выходе кюветы с рабочей смесью. Приведенное выше значение максимальной концентрации Xe_2Cl^* соответствует запасенной энергии ~ 6 мДж, что дает значение эффективности возбуждения около 9%.

Численное моделирование активной среды проводилось на основе решений системы кинетических уравнений, которая аналогична приведенной в [9] с добавлением уравнения, описывающего фотодиссоциацию молекулярного хлора. Для этого использовались программы на языке C++ (на основе методов Булирша – Штера и Рунге–Кутты) и Mathcad (методы Булирша – Штера и Розенброка), которые дали одинаковые результаты. При этом численное моделирование дает в 0.6 раза меньшее пиковое значение коэффициента усиления и, как уже отмечалось выше, вдвое более медленный временной спад усиления (см. рис.4), чем наблюдается в эксперименте. Различие пиковых значений может быть связано со следующим обстоятельством. Среди процессов, участвующих в формировании активной среды, важное место занимает поглощение излучения накачки эксимерами Xe_2Cl^* [13], которое формально рассматривается как тушение с распадом на атомы ксенона и хлора. Однако согласно [13] при этом поглощении образуются ионы XeCl^+ и Xe^+ , которые могут в результате плазмохимических реакций приводить к возникновению дополнительного канала возбуждения Xe_2Cl^* . Поэтому кинетическая модель в дальнейшем должна быть дополнена вышеуказанными процессами. На рис.6 приведена расчетная зависимость коэффициента усиления малого сигнала от интенсивности накачки в импульсе длительностью 60 нс, демонстрирующая перспективы существенного увеличения усиления при повышении энергии накачки. По указанным выше причинам данную зависимость следует рассматривать как оценку снизу.

3. Заключение

Таким образом, впервые экспериментально наблюдалось усиление в газообразной активной среде Xe_2Cl^* при оптическом возбуждении смеси Cl_2 –Хе излучением ХеСл-лазера на длине волны 308 нм за счет механизма фотоассоциации атомов Хе и Сл с последующей рекомбинацией образующихся эксимеров ХеСл(В,С) с ксеноном. Достигнутый коэффициент усиления в максимуме полосы

усиления, находящемся на длине волны 504 нм, составил $g_0 = 1.3 \times 10^{-3}$ см $^{-1}$, что сопоставимо с коэффициентом усиления, характерным для ХеF(С–А)-усилителя, который в настоящее время используется в гибридных фемтосекундных системах мультитераваттной мощности видимого диапазона [3, 4]. Имеются перспективы значительного увеличения коэффициента усиления в активной среде Xe_2Cl^* при повышении энергии накачки. Эффективность возбуждения активной среды, которая определяется как отношение энергии активных молекул, запасенной в активной среде к моменту достижения максимума усиления, к поглощенной к этому моменту энергии накачки, близка к 10%.

Преимуществом активной среды Xe_2Cl^* по сравнению с ХеF(С–А) являются более высокие значения излучательного времени жизни Xe_2Cl^* (245 нс) и, следовательно, потока энергии насыщения (0.15 Дж/см 2) на рабочем переходе по сравнению с соответствующими параметрами для перехода ХеF(С–А) – 100 нс и 0.05 Дж/см 2 [3, 4]. Кроме того, достоинство активной среды Xe_2Cl^* состоит также в простоте реализации импульсно-периодического режима работы усилителя фемтосекундных импульсов, поскольку рабочая смесь, состоящая из молекулярного хлора и ксенона, не расходуется в результате накачки и не требует замены после каждого импульса возбуждения. При этом в качестве источника накачки могут быть использованы ХеСл-лазеры с накачкой быстрым разрядом, допускающим импульсно-периодический режим работы. По имеющимся в литературе сведениям максимальная энергия, достигнутая в ХеСл-лазере с накачкой быстрым разрядом, составляет 66 Дж [14].

Масштабируемость данной активной среды в силу ее газовой природы и имеющиеся в настоящее время технологии изготовления ХеСл-лазеров, возбуждаемых электронным пучком, с энергией по крайней мере 2 кДж [15] позволяют судить о Xe_2Cl^* как о перспективной активной среде для фемтосекундных лазерных систем субэксаваттной мощности излучения видимого диапазона.

1. Mikheev L.D. *Laser Part. Beams*, **10**, 473 (1992).
2. Михеев Л.Д. *Квантовая электроника*, **32**, 1122 (2002) [*Quantum Electron.*, **32**, 1122 (2002)].
3. Mikheev L.D., Tcheremiskine V.I., Uteza O.P., Sentsis M.L. *Progr. Quantum Electron.*, **36**, 98 (2012).
4. Mikheev L.D., Losev V.F., in *High Energy and Short Pulse Lasers*. Ed. R. Viskup (Croatia: InTech, 2016, Ch.6, pp 131–161).
5. Tang K.Y., Lorents D.C., Huestis D.L. *Appl. Phys. Lett.*, **36**, 347 (1980).
6. Зуев В.С., Канаев А.В., Михеев Л.Д. *Квантовая электроника*, **14**, 1397 (1987) [*Sov. J. Quantum Electron.*, **17**, 884 (1987)].
7. Wiedeman L., Fajardo M.E., Apkarian V.A. *Chem. Phys. Lett.*, **134**, 55 (1987).
8. Fajardo M.E., Apkarian V.A. *Chem. Phys. Lett.*, **134**, 51 (1987).
9. Михеев Л.Д. *Квантовая электроника*, **35**, 984 (2005) [*Quantum Electron.*, **35**, 984 (2005)].
10. Hubinger S., Nee J.B. *J. Photochem. Photobiol. A: Chem.*, **86**, 1 (1995).
11. Ярив А. *Введение в оптическую электронику* (М.: Высшая школа, 1983).
12. McCown A.W., Eden J.G. *J. Chem. Phys.*, **81**, 2933 (1984).
13. McCown A.W., Ediger M.N., Geohagan D.B., Eden J.G. *J. Chem. Phys.*, **82**, 4862 (1985).
14. Champagne L.F., Dudas A.J., Harris N.W. *J. Appl. Phys.*, **62**, 1576 (1987).
15. Бугаев С.П., Абдуллин Э.Н., Зорин В.Б., Ковальчук Б.М., Логинов С.В., Месяц Г.А., Скакун В.С., Тарасенко В.Ф., Толкачев В.С., Щанин П.М. *Квантовая электроника*, **34**, 801 (2004) [*Quantum Electron.*, **34**, 801 (2004)].