

ФЕДЕРАЛЬНОЕ ГОСУДАРСТВЕННОЕ Б/ДЖЕТНОЕ ОБРАЗОВАТЕЛЬНОЕ
УЧРЕЖДЕНИЕ ВЫСШЕГО ОБРАЗОВАНИЯ
«МОСКОВСКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ УНИВЕРСИТЕТ
Имени М.В. ЛОМОНОСОВА»
ФИЗИЧЕСКИЙ ФАКУЛЬТЕТ
КАФЕДРА «ОБЩЕЙ ФИЗИКИ»

МАГИСТЕРСКАЯ ДИССЕРТАЦИЯ
«СОЗДАНИЕ ЛАЗЕРНОГО ИСТОЧНИКА УЛЬТРАФИОЛЕТОВОГО ИЗЛУЧЕНИЯ
НА БАЗЕ KrCl ЛАЗЕРА ДЛЯ ОПТИЧЕСКОЙ НАКАЧКИ АТОМАРНОГО
КИСЛОРОДА В ВОЗДУХЕ»

Выполнила студентка
Группы 205М
Ионушайте Е.В.

Научный руководитель
Д.Ф.-М.Н. Косарева О.Г.

Допущена к защите
Зав. кафедрой

Москва
2023

Оглавление

1. ВВЕДЕНИЕ	3
2. ОБЗОР ЛИТЕРАТУРЫ	5
2.1. ВОЗБУЖДЕНИЕ КИСЛОРОДА В АТМОСФЕРНОМ ВОЗДУХЕ	5
2.2. ОБЩИЕ ПРИНЦИПЫ РАБОТЫ ЭКСИМЕРНЫХ ЛАЗЕРОВ.....	6
2.3. АНАЛИЗ СОВРЕМЕННЫХ РАБОТ ПО ВОЗБУЖДЕНИЮ АТОМАРНОГО КИСЛОРОДА ЛАЗЕРНЫМ ИЗЛУЧЕНИЕМ	9
2.4. KrCl ЛАЗЕР	11
2.5. ВЫНУЖДЕННОЕ КОМБИНАЦИОННОЕ РАССЕЯНИЕ	13
2.6. ШИРИНА СПЕКТРА ЛАЗЕРНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ, УШИРЕНИЕ ЛИНИЙ	16
2.7. ДИСПЕРСИОННЫЕ РЕЗОНАТОРЫ.....	19
2.8. ЛАЗЕРЫ НА КРАСИТЕЛЯХ	22
2.9. ЛАЗЕРНЫЕ УСИЛИТЕЛИ	25
3. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ	31
3.1. ОПТИМИЗАЦИЯ ЭКСИМЕРНОГО ЛАЗЕРА LAMBDA PHYSIK LPX 210i для работы на KrCl	31
3.2. ОПТИМИЗАЦИЯ ЭКСИМЕРНОГО ЛАЗЕРА ЦФП ИОФАН МОДЕЛЬ 1701 для работы на KrCl	34
3.3. ПОЛУЧЕНИЕ УЗКОПОЛОСНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ НА ДЛИНЕ ВОЛНЫ 222 нм	36
3.4. ИЗМЕРЕНИЕ СЕЧЕНИЯ МНОГОФОТОННОЙ ИОНИЗАЦИИ МОЛЕКУЛЯРНОГО КИСЛОРОДА НА ДЛИНЕ ВОЛНЫ 222 нм	40
4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ	46
СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ	48

1. Введение

В настоящее время для задач зондирования атмосферы широко используются LIDAR (англ. Light Detection and Ranging) системы, однако, их существенным недостатком является маленькая величина полезного сигнала. При проведении исследований на больших высотах излучение рассеивается во все стороны и принимающий детектор собирает сигнал только с очень маленького участка сферы. Эту проблему можно решить путем создания в воздухе источника когерентного излучения, направленного в сторону наблюдателя (лазер на воздухе). По сравнению с традиционно используемым рассеянным излучением от направленного в небо лазерного импульса, когерентное усиленное спонтанное излучение имеет высокую направленность и низкую расходимость, что может послужить основой для создания более высокочувствительного метода зондирования атмосферных примесей.

Для активной среды воздушного лазера теоретически можно использовать любой газ, входящий в состав атмосферного воздуха. Однако, по состоянию исследований в этой области на сегодняшний день, наилучшим образом себя показали атомарный кислород и азот при накачке УФ излучением с длиной волны 226 и 207 нм соответственно. На данный момент развитие этой перспективной области ограничено отсутствием подходящих для накачки источников излучения на данной длине волны. В **Обзоре литературы**, исследовались подходы к получению излучения на данной длине волны, однако, полученные результаты непригодны для масштабирования ввиду отсутствия подходящих лазеров. Во всех, имеющихся на данный момент, работах для накачки использовались твердотельные лазеры, излучающие в ИК диапазоне [1, 2], которые требовали сложных многоступенчатых схем конверсии длины волны для получения нужного УФ излучения. В настоящей работе для этих целей предлагается использовать эксимерный лазер KrCl.

Излучение газоразрядных эксимерных лазеров дискретно заполняет УФ диапазон спектра. Впервые эксимерный лазер был создан научной группой

Н.Г. Басова в ФИАН им. А.Н. Лебедева, это был лазер на димере инертного газа Xe_2 [3]. Такие лазеры нашли широкое применение и продолжают пользоваться большой популярностью для решения различных прикладных задач и сейчас. На данный момент они применяются для создания рисунков фотолитографическими методами, лазерной обработки материалов, лазерного напыления, а также для различных медицинских манипуляций.

Как уже было сказано ранее, эксимерные лазеры генерируют излучение в УФ диапазоне, однако, длина волны коммерчески доступных лазерных систем не соответствует нужному резонансному переходу. Существует малораспространённый KrCl лазер, длина волны которого, 222 нм, очень близка к требуемой для накачки атомарного кислорода длине волны 225,6 нм [4]. Более того, для длины волны 222 нм существует высокоэффективный метод конверсии в резонансную длину волны 225.6 нм за счет вращательного вынужденного комбинационного рассеяния (ВКР) в H_2 или элегазе SF_6 . Таким образом, целью работы было создание лазерного источника УФ излучения для оптической накачки атомарного кислорода в воздухе на базе эксимерного лазера KrCl .

Для достижения этой цели в рамках работы были решены следующие задачи:

- 1) запуск лазера, работающего на активной среде KrCl
- 2) создание мощного усилителя на длине волны 222 нм
- 3) получение узкополосного излучения на длине волны 222 нм
- 4) исследование многофотонной ионизации воздуха

2. Обзор литературы

2.1. Возбуждение кислорода в атмосферном воздухе

Кислород является основной составляющей атмосферного воздуха. Эксперименты по ионизации атомарного кислорода велись еще в середине прошлого столетия. Рассмотрим механизм возбуждения атомарного кислорода в атмосфере. На Рисунке 1 продемонстрирована диаграмма энергетических уровней и схематично показан процесс возбуждения. При поглощении двух фотонов на длине волны 226 нм молекула кислорода диссоциирует, далее, при поглощении еще двух фотонов на длине волны 226 нм, атомы переходят из состояния $2p^3P$ в возбужденное состояние $3p^3P$. Затем, при испускании фотона на длине волны 845 нм атомы релаксируют в состояние $3s^3S$.

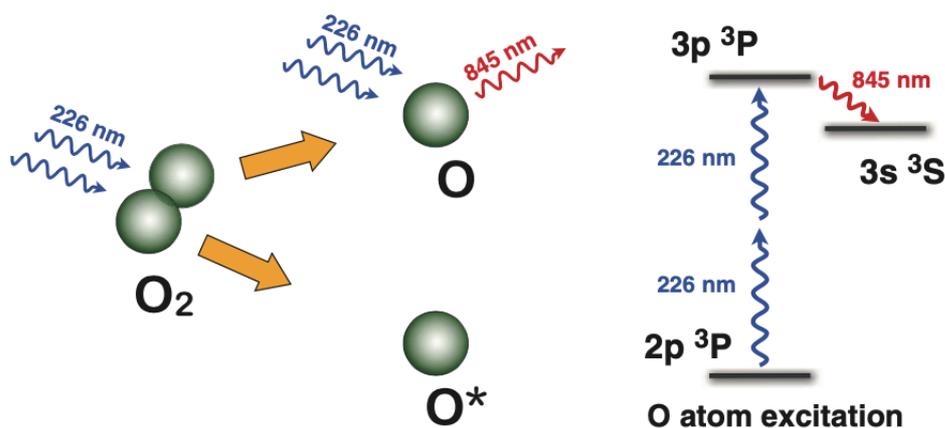


Рис. 1. Двухфотонная диссоциация молекулы кислорода и последующее двухфотонное резонансное возбуждение атома [2].

Генерация в воздухе на молекулах кислорода может быть осуществляется за счет пикосекундной, наносекундной или фемтосекундной накачки. В работе [5] было показано, что генерация на воздухе может быть получена с помощью длинных (наносекундных) импульсов накачки, однако, для этого необходима высокая энергии импульса, для поддержания необходимой для многофотонного возбуждения интенсивности. В воздухе кислород находится в виде молекулы и для получения излучения на длине волны 845 нм, необходимо предварительно его диссоциировать. Чаще всего

диссоциации молекулярного кислорода добиваются за счет предварительного импульса. Однако, использование наносекундных импульсов для накачки обеспечивает достаточную диссоциацию молекул внутри импульса накачки и импульса для предварительной диссоциации не требуется. За время порядка 10–20 пс за счет вынужденного излучения происходит переход всех атомов из возбужденного состояния. Непрерывная накачка в течение нескольких наносекунд дает возможность генерировать множественные импульсы за счет последовательности многофотонного возбуждения и быстрого вынужденного излучения (Рисунок 2). Накачка может осуществляться разными способами, в том числе и с помощью эксимерных лазеров.

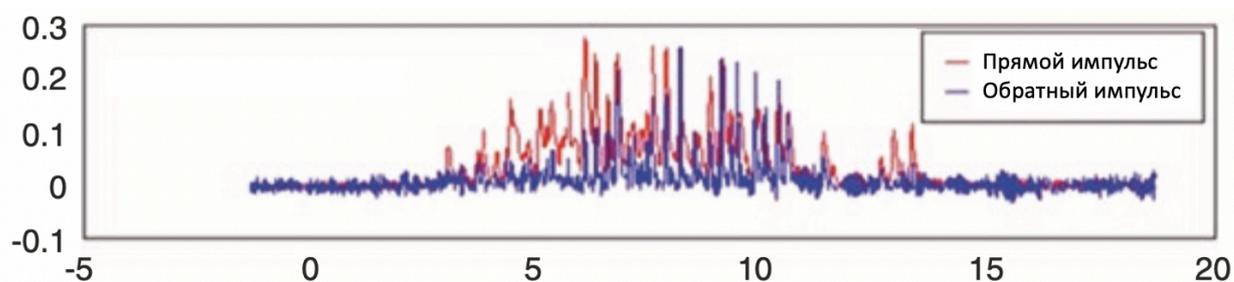


Рис. 2. Импульсы, излучаемые воздушным лазером с наносекундной накачкой и давлением активной среды 1 атм, в прямом и обратном направлениях [5].

2.2. Общие принципы работы эксимерных лазеров

Взаимодействие атомов или молекул с замкнутыми оболочками, находящимися в основных состояниях, обычно сводится к отталкиванию, за исключением далекодействующих Ван-дер-Ваальсовских или электростатических сил. Однако, при возбуждении одного из участников взаимодействия может образовываться химическая связь. Такое связанное возбужденное состояние называется эксимерным или эксиплексным и переход из него в состояние непрерывного спектра образует активную среду лазера.

Эксимеры и эксиплексы представляют собой комплексы в возбужденном состоянии. Образование эксимеров можно представить следующим уравнением:



Где звездочки обозначают возбужденное состояние. Если взаимодействие происходит между возбужденными атомами одного типа, образующая молекула называется эксимерной, если между атомами разного типа – эксиплексом:



Эксиплекс также может образовываться, если в связи в возбужденном состоянии участвует более двух атомов, независимо от того, являются ли эти атомы одинаковыми или разными.

Образование эксиплексов и эксимеров — это физическое, а не химическое явление. Связь между молекулами сохраняется только во время жизни молекулы в возбужденном состоянии, комплексы диссоциируют при излучательном или безызлучательном снятии возбуждения [6].

Генерация в эксимерных лазерах происходит на переходах между различными электронными состояниями молекул. Рассмотрим схематичное представление энергетических уровней для основного и возбужденного состояний молекулы A_2 .

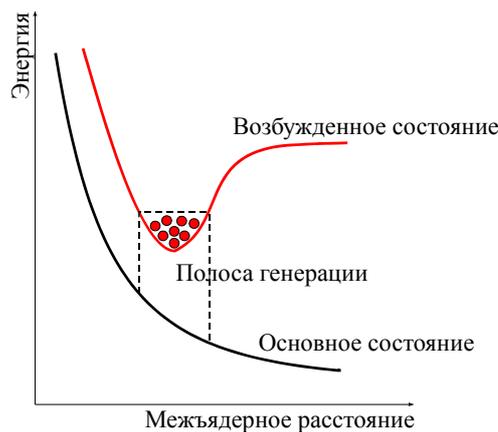


Рис. 3. Энергетические уровни эксимерного лазера [7].

Наличие минимума у потенциальной кривой возбужденного состояния говорит о существовании эксимерной молекулы A_2 . В основном состоянии минимум отсутствует и при переходе в это состояние молекула немедленно

диссоциирует. Переходы между состояниями являются относительно широкополосными.

В общем случае потенциальные кривые основного состояния можно разделить на три типа:

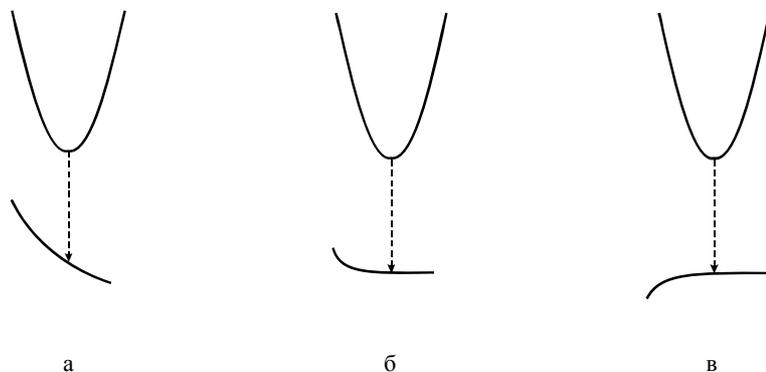


Рис. 4. а - резко отталкивательная кривая; б - плоская кривая; в - кривая связанного состояния на больших межъядерных расстояниях [8].

Взаимодействие между атомами с незаполненной оболочкой и любой системой, имеющей заполненную оболочку или подоболочку, в большинстве случаев носит чисто отталкивательный характер (Рисунок 4 а). Образованию связи препятствует большой энергетический порог, который необходимо преодолеть для переноса электронов с замкнутых оболочек. Сила отталкивания пропорциональна перекрытию зарядов. Для систем с незамкнутыми оболочками большую роль в определении типа взаимодействия играет ориентация зарядов. В зависимости от взаимной ориентации зарядов отталкивание зарядов может быть как сведено к минимуму, потенциальная кривая в этом случае становится плоской (Рисунок 4 б), так и наоборот усилится. Плоские потенциальные кривые наблюдаются в случае взаимодействия отталкивательной конфигурации основного состояния со связанными возбужденными конфигурациями. Излучение эксимерными молекулами также возможно, когда основное состояние является сильно связанным (Рисунок 4 в), но при наличии больших межъядерных расстояний.

Отдельное место среди эксимерных лазеров занимают лазеры на галогенидах инертных газов, к которым относится и используемый в данной работе лазер KrCl. Атом инертного газа в возбужденном состоянии

соединяется с атомом галогена, что приводит к образованию эксиплекса галогенидов инертных газов. Наиболее широко используемыми лазерами этого типа являются ArF (193 нм), KrF (248 нм), XeCl (308 нм), XeF (351 нм). Образование эксиплекса в данном случае происходит за счет ионной связи: возбужденный электрон переходит от атома инертного газа к атому галогена.

2.3. Анализ современных работ по возбуждению атомарного кислорода лазерным излучением

Большинство имеющихся работ были сделаны с использованием лазеров, генерирующих излучение в ИК диапазоне. Во всех предложенных подходах использовались многоступенчатые схемы конверсии, включающие в себя генерацию второй и последующих гармоник, конверсию излучения в лазерах на красителях и смешение частот.

В работе [1] для получения необходимой для возбуждения кислорода длины волны 225.6 нм использовалось смешение излучения Ti:Sapphire и Nd:YAG лазеров с последующим удвоением частоты. Таким образом, получались импульсы энергией 100 мДж, длительностью 100 пс.

Подход, основанный на использовании Nd:YAG лазера и лазера на красителях, для получения необходимой для накачки кислорода длины волны был продемонстрирован в работе [9]. Лазерная система состояла из Nd:YAG лазера, длина волны второй гармоники которого составляет 532 нм. Он накачивал импульсный лазер на красителе с выходным излучением на длине волны 622 нм. Это излучение смешивалось с третьей гармоникой Nd:YAG с длиной волны 355 нм в блоке смешения частот. При взаимодействии двух частот в нелинейной среде в выходящем излучении возникают две дополнительные частоты, суммарная и разностная. Таким образом, в результате всех манипуляций, получается импульс с длиной волны 226 нм длительностью около 10 нс, энергия импульса составляла приблизительно 10 мДж.

Обратная генерация в упомянутых выше работах имела порог порядка сотни ГВт/см², что является серьезным ограничением для использования этих подходов для удаленного мониторинга атмосферы. Так как используемые в

работах выше лазеры могли создать такую интенсивность только при условии жесткой фокусировки, что неприменимо для больших расстояний. В работе [10] был продемонстрирован метод, который позволяет практически полностью устранить данные пороговое ограничения. Наносекундный лазер Nd:YAG ионизирует кислород в оптической пробке и далее, в процессе рекомбинации с электронами (диссоциативная электрон-ионная рекомбинация), образуются атомы кислорода. Нейтральные атомы кислорода возбуждаются УФ излучением с $\lambda=225.6$ нм, полученным за счет параметрического преобразования излучения третьей гармоники импульсного Nd:YAG лазера с энергией импульса порядка 0.5 Дж с последующим удвоением частоты. В этом случае энергия на длине волны 225.6 нм составляла 5 мДж в импульсе длительностью 5 нс. Параметрическая генерация света возникает при прохождении света через нелинейную среду. Длина волна накачки с частотой ω распадается на две волны с частотами ω_1 и ω_2 , для которых выполняется условие $\omega_1 + \omega_2 = \omega$. На этом явлении строится работа оптических параметрических генераторов, которые позволяют плавно перестраивать излучение лазера, работающего определенной длине волны, в другие волны в достаточно широком диапазоне, что существенно расширяет возможности для применения лазеров.

В работе [11] предлагается использование четвертой гармоники Ti:Sapphire для получения резонансной длины волны. В результате этих преобразований получается импульс с энергией ~ 20 мкДж длительностью 50 фс. В целом, генерация четвертой гармоники может иметь высокую, до $\sim 10\%$ эффективность. Однако, на исходной длине волны 904 нм, необходимой для получения четвертой гармоники на 226 нм, Ti:Sapphire лазер обладает относительно низкой энергией импульса, эта длина волны не является оптимальной рабочей частотой для данного лазера.

Во всех рассмотренных выше подходах основным слабым местом является многоступенчатость схемы. Эффективность перестройки длины волны за счет лазеров на красителях или оптических параметрических

генераторов в лучшем случае порядка 10-15%, что в целом является приемлемым значением. Однако, в схеме, где несколько оптических устройств с такой эффективностью идут последовательно, на выходе получается менее процента от изначальной энергии. Также следует учитывать эффективность генераций второй и последующих гармоник и смещения разных длин волн. Таким образом, в результате всех преобразований из изначальных высокоэнергетических импульсов Ti:Sapphire и Nd:YAG лазеров получается ультрафиолетовый импульс с весьма низкой энергией.

Энергия УФ импульса	Длительность УФ импульса	Средняя мощность УФ импульса	Оценка эффективности конверсии ИК в УФ
100 мкДж	100 пс	1 МВт	0,1% [1]
10 мДж	10 нс	1 МВт	0,1% [9]
5 мДж	5 нс	1 МВт	0,16% [10]
18 мкДж	50 фс	360 МВт	0,1% [11]

Таблица 1. Оценка эффективности конверсии в УФ излучение.

Также весьма существенным минусом конверсии излучения твердотельных лазеров является отсутствие возможности масштабирования таких оптических систем. Эксимерные лазеры и рассматриваемый в моей работе подход к получению резонансной длины волны этого минуса лишены.

2.4. KrCl лазер

KrCl лазер оказался забытым в эпоху развития эксимерных лазерных систем. Отчасти это связано с тем, что имеются лазеры на длинах волн близких к KrCl (ArF 193нм, KrF 248 нм), которые способны генерировать гораздо больше энергии. Этот параметр является наиболее важным для коммерческих приложений эксимерных лазеров, в которых в основном важна наибольшая энергия выходного импульса при наименьшей мощности накачке. В работе [12] говорится, что для достижения с помощью KrCl энергий аналогичных KrF

и XeCl требуется на порядок выше удельная электрическая мощность, подаваемая в активную среду лазера. Что безусловно является аргументом не в пользу KrCl , однако, говорит о том, что генерация высокоэнергетичных лазерных импульсов с помощью KrCl в целом возможна.

Успешная работа всех лазеров достигается за счет оптимизации его двух основных составляющих: активной среды и резонатора. Также существенную роль в работе лазера играет система накачки активной среды лазера. Для достижения максимальной эффективности генерации основной разряд генерируется с некоторым временной задержкой после запуска предионизации, за счет этого достигается лучшая ионизация большего объема активной среды лазера. В работе [13] было показано, что для оптимальной работы KrCl лазера требуется не только более высокая мощность накачки, но и высокая интенсивность источника предионизации. В современных лазерах для эффективной накачки активной среды широко используется схема LC-инвентора.

Впервые генерация на переходах молекулы KrCl была получена на смесях He/Kr/BCl_3 и He/Kr/Cl_2 , эффективность генерации на них оказалась крайне низкой. Добиться увеличения энергии генерации с использованием в качестве донора хлора молекулу HCl . Существенную роль в величине выходной энергии лазера играет также давление активной среды, ее состав, а в случае с KrCl лазером, как было выяснено, и ее температура. Исследования по эффективности генерации лазера в зависимости от состава активной среды были проведены в работе [12]. В данной работе было показано, что при увеличении давления активной среды лазера в диапазоне от 150 до 350 кПа коэффициент усиления возрастает на порядок, при этом с повышением давления активная среда с буферным газом Ne (0,09% HCl /10,1% Kr /1,5% He /88,3% Ne) дает большую энергию генерации чем активная среда с He (в качестве буферного газа (0,09% HCl /10,1% Kr /89,8% He). Однако, использование Ne позволяет существенно снизить стоимость эксплуатации

лазера, поэтому в большинстве работ по данной тематике используется именно он.

В России вопросом создания эффективного KrCl лазера активно занималась научная группа А. М. Ражева. В работе [4] им удалось достичь энергии генерации 700 мДж с КПД 1%, с использованием буферного газа Ne. Надо отметить, что такие параметры не сильно уступают более энергоэффективным эксимерным лазерам. Однако, в данной статье использовалась полностью самодельная лазерная система и результаты, полученные с ее помощью, нерелевантны для коммерчески доступных систем. В моей работе используется одна из самых широко распространённых коммерческих эксимерных лазерных систем, однако, из-за малого интереса к KrCl в последние десятилетия она не оптимизирована для работы с ним и нет никакой доступной информации об оптимальных параметрах для работы данной лазерной системы на этой активной среде. Одной из основных задач моей работы как раз и было выяснение этих параметров.

2.5. Вынужденное комбинационное рассеяние

Как известно, при взаимодействии света с веществом возникают различные эффекты, одним из них является комбинационное рассеяние света. Лазерное излучение, падающее на вещество, может быть рассеяно как упруго так и неупруго. При упругом рассеивании падающий фотон не обменивается энергией с молекулой и, соответственно, частота падающего излучения в точности равна частоте рассеянного излучения. Такое рассеяние является преобладающим и носит название Релеевского рассеяния. При неупругом рассеянии кинетическая энергия фотона может как увеличиваться, так и уменьшаться при взаимодействии с частицами вещества (эффект Рамана). При этом молекула приобретает или теряет часть энергии, согласно квантовым представлениям энергия может измениться на ΔE , соответствующую разнице между энергиями двух ее разрешенных состояний. Спектральный анализ рассеянного излучения обнаруживает присутствие линий, смещенных вниз (Стоксовое рассеяние) и вверх (Антистоксовое рассеяние) по частоте на

величину, равную колебательным или вращательным частотам облучаемого образца.

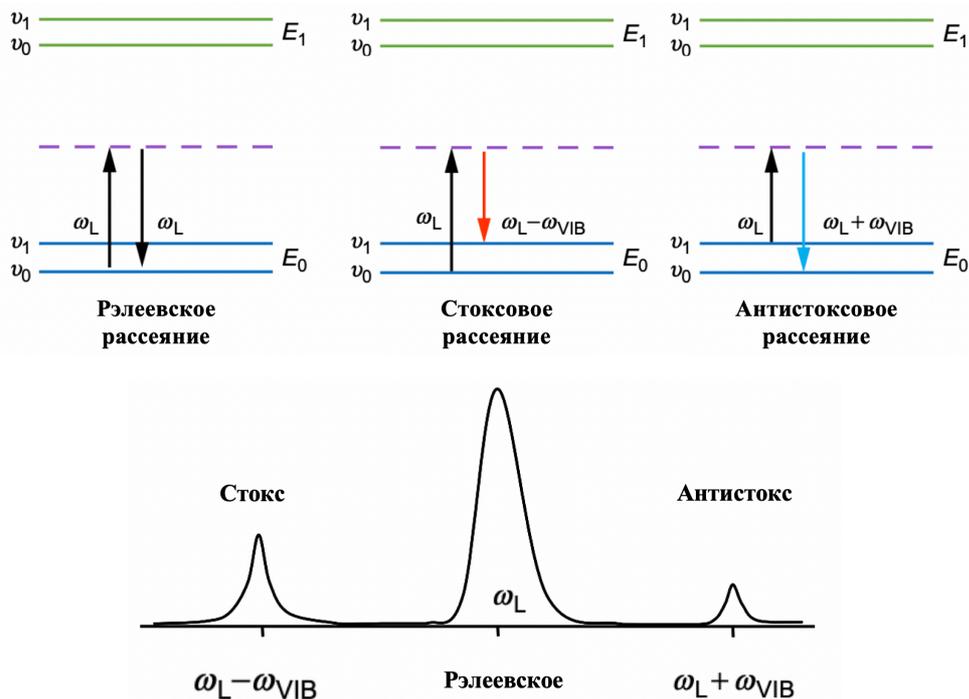


Рис. 5. Переходы между энергетическими уровнями молекулы и спектр излучения при комбинационном рассеянии.

Поскольку антистоксовые компоненты появляются за счет излучения молекулами, находящимися в возбужденном состоянии, то интенсивность этого излучения ниже интенсивности стоксовых компонент на величину $e^{-\hbar\omega/kT}$, согласно распределению Больцмана.

При достаточно большой интенсивности падающего излучения в среде начинают проявляться нелинейные эффекты, из-за этого может генерироваться излучение не только на исходной частоте, стоксовой и антистоксовой компонентах, но и на разностных частотах. Таким образом, возникают колебания на частоте собственных колебаний частиц, что приводит к резонансному возбуждению. То есть, сам рассеянный свет стимулирует дальнейший процесс рассеяния, это явление называется вынужденным комбинационным рассеянием. Также, при большой интенсивности падающего света, интенсивность стоксовой компоненты становится достаточно большой, чтобы излучение уже на этих частотах служило исходным, например, ω_S —

$\omega_{VIB} = \omega_S - 2 * \omega_{VIB}$. Таким образом, в спектре выходного излучения появляются стоксовы и антистоксовы компоненты высоких порядков.

Усиления света при вынужденном комбинационном рассеянии при накачке волной с интенсивностью I_H в среде длиной L можно описать выражением $\exp(gI_H L)$. Где g имеет вид $A/\Delta\omega$, а $\Delta\omega = 2\pi(\Delta\nu_H + \Delta\nu_{CP})$, а $\Delta\nu_H$ – спектральная ширина возбуждающего излучения, $\Delta\nu_{CP}$ – спектральная ширина перехода [14]. Таким образом, нетрудно заметить, что интенсивность стоксовых компонент обратно пропорциональна спектральной ширине возбуждающего излучения и для наиболее эффективной конверсии необходимо наличие узкой линии излучения накачки.

Существующие на данный момент эксимерные лазеры покрывают УФ диапазон с достаточно большими промежутками, поэтому вопрос их перестройки крайне актуален. KrCl имеет широкую полосу усиления порядка 3 нм [15]. И узкую линию излучения накачки от данного лазера, при наличии перестраиваемой системы, можно двигать вдоль полосы усиления в некотором диапазоне.

В литературе наблюдается определенный разброс значений длины волны излучения KrCl лазера. Однако, существуют как минимум две среды, рамановский сдвиг в которых теоретически может конвертировать излучение KrCl лазера в необходимую резонансную длину волны 225,6 нм. Для наших целей может подойти как ВКР в водороде (H_2), так и ВКР в элегазе (SF_6). В работе [16] при рассеянии лазерного излучения на молекулах H_2 было получено несколько стоксовых компонент, самой интенсивной из которых оказалась S_1 со сдвигом $587,40 \text{ см}^{-1}$. В результате несложных расчетов нетрудно заметить, что при такой величине рамановского сдвига излучения на длине волны 222,6 нм, мы с большой точностью получаем излучение на резонансной длине волны кислорода 225,6 нм. В элегазе же сдвиг наиболее интенсивной компоненты равен 774 см^{-1} [17]. Таким образом, элегаз подойдет если узкая линия излучения накачки будет находиться на длине волны 221,6 нм.

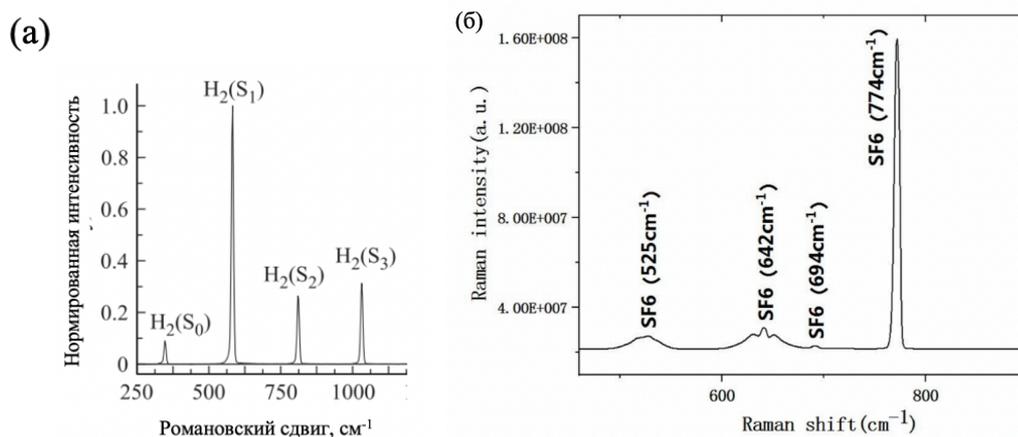


Рис. 6. Спектр выходного излучения после ВКР в водороде (а) и элегазе (б).

Интенсивность стоксовых компонент и распределение энергии между ними зависит от множества параметров. Так, в работе [18] было показано что при увеличении зоны каустики, то есть при использовании более длиннофокусной линзы, эффективность конверсии в S₁ возрастала, превышая 60%. В работе [17] было показано, что интенсивность всех стоксовых компонент линейно возрастает с увеличением мощности накачки и давления элегаза. Качество пучка лазера накачки также очень важно для эффективности комбинационного рассеяния и в целом его для его возникновения. В случае, когда в нестабильный резонатор не инжектируется затравочный пучок, интенсивность стоксовых гораздо меньше, чем при взаимодействии с усиленным лазерным импульсом.

2.6. Ширина спектра лазерного излучения, уширение линий

Как уже было сказано выше ширина линии лазерного излучения играет ключевую роль в возникновении ВКР, а ВКР, в свою очередь, крайне важно в моей работе для получения резонансной длины волны. Поэтому в данном параграфе будет более подробно рассмотрен вопрос спектральной ширины лазерного излучения и почему в целом может уширяться спектр излучения.

Лазерное излучения возникает при переходе частиц между двумя энергетическими уровнями, при этом стоит учитывать, что время жизни частицы в возбужденном состоянии конечно. Вспоминая соотношение неопределенности $\Delta E \Delta t \approx \hbar$, нетрудно заметить, что при сокращении времени жизни частиц на энергетических уровнях уширяться линия переходов между

уровнями. Неопределенность энергии состояния приводит к неопределенности частоты перехода. При отсутствии внешних воздействий время жизни определяет только спонтанным излучением. Однако, учитывая, что в реальных системах всегда присутствует взаимодействие частицы с окружающей средой, обычно влиянием спонтанного излучения на ширину линии можно пренебречь. Релаксационные безызлучательные переходы обычно являются более быстрыми процессами и существенно сокращают время жизни частицы на энергетических уровнях. Таким образом, излучение с уширенных линий приобретает спектральную ширину. Контур линии с естественным уширением имеет лоренцову форму с шириной на полувысоте $\Delta\nu_{л} = \frac{1}{2\pi\tau}$, где τ – время жизни в возбужденном состоянии. Нормированный профиль спектральной линии определяется выражением:

$$q(\nu) = \frac{1}{2\pi} \frac{\Delta\nu_{л}}{(\nu - \nu_0)^2 + \frac{\Delta\nu_{л}^2}{4}}, \quad (3)$$

которое по сути является нормированным (на единицу) профилем интенсивности излучения. В общем случае $\Delta\nu_{л} = \Delta\nu_{сп} + \Delta\nu_{безызл}$. В случае если нижний энергетический уровень перехода не является основным, вклад в ширину дают неопределенности энергий обоих уровней. Выражение (3) легко получить описывая возбужденный электрон в атоме используя классическую модель затухающего гармонического осциллятора. Тогда, решая дифференциальное уравнение:

$$\ddot{x} + \gamma\dot{x} + \omega_0^2 x = 0, \quad (4)$$

где ω_0 – круговая частота колеблющегося электрона в диполе, состоящем из электрона и ядра, а коэффициент затухания γ обратно пропорционален среднему времени жизни возбужденного состояния ($\gamma = \frac{1}{\tau}$, $\gamma = \Delta\omega_{л} = \Delta\nu_{л} * 2\pi$). Исходя из этого уравнения нетрудно найти зависимость амплитуды от частоты колебаний и, соответственно, зависимость для интенсивности. Такое уширение называется однородным, при однородном уширении спектральную линию $q(\nu)$ излучают как единичные частицы в системе, так и вся система в

целом. Изменения в спектре излучения в таком случае происходит одновременно для всей системы и одинаковым образом.

Совсем иная картина возникает при неоднородном уширении. При неоднородном уширении наблюдаемые спектральные линии могут являться суперпозицией спектральных линий, излучаемых разными частицами в системе, то есть, каждая частица излучает и поглощает не в пределах всей экспериментально наблюдаемой линии. Классическим примером неоднородного уширения является доплеровское уширение. Тепловое движение молекул сдвигает частоту излучения в результате доплеровского эффекта. Этот эффект зависит от массы излучателя, частоты линии и температуры. Доплер-эффект первого порядка смещает частоту излучения летящих к наблюдателю и частиц на величину $\nu_0 u/c$, ν_0 – где частота излучения покоящийся частицы. Как известно, частицы в газе имеют определенное распределение по скоростям и движется с различными скоростями, соответственно, и частотный сдвиг они будут иметь различный. Таким образом, суммарная форма линии системы частиц (газа) определяется в основном функцией распределения частиц по скоростям $p(u)$. Форма профиля спектральной линии оказывается связанной с $p(u)$ соотношением:

$$q(\nu) d\nu = p(u) du. \quad (5)$$

Наблюдаемая частота, как было сказано ранее, равна

$$\nu = \nu_0 \left(1 + \frac{u}{c}\right) \quad (6)$$

Следовательно, $u = c(\nu - \nu_0)/\nu_0$; $du = (c/\nu_0)d\nu$. Отсюда получаем

$$q(\nu) = \frac{c}{\nu_0} p\left(c \frac{\nu - \nu_0}{\nu_0}\right). \quad (7)$$

Подставляя сюда максвелловское распределение по скоростям, нетрудно получить выражение для формы спектральной линии при доплеровском уширении

$$q(\nu) = \frac{1}{\Delta\nu_T \sqrt{\pi}} \exp\left[-\left(\frac{\nu - \nu_0}{\Delta\nu_T}\right)^2\right], \quad (8)$$

где $\Delta\nu_T$ характерная спектральная ширины линии, равной доплеровскому сдвигу частоты при средней тепловой скорости ($u_0 = \sqrt{2kT/m}$) $\Delta\nu_T = \nu_0 u_0/c$).

Спектр эксимеров уширен однородно, поэтому излучение эксимерных лазеров можно эффективно усиливать.

2.7. Дисперсионные резонаторы

Спектр лазерного излучения можно обужать путем внедрения в резонатор различных дисперсионных элементов. Рассмотрим подробнее использование дифракционных элементов для получения узкой линии. Для селективных резонаторов чаще всего применяются призмы и дифракционные решетки или сочетание этих оптических элементов.

Резонаторы с призмами являются одним из самых распространённых видов дисперсионных резонаторов. Они отличаются простой конструкцией, доступностью, а главное универсальностью. В общем случае пучок монохроматического излучения, попадая оптически более плотную среду, в результате преломления сближается с нормалью к поверхности раздела. За счет этого сечение пучка в плоскости падения увеличивается, а расходимость пропорционально уменьшается.

Спектрально-селективные свойства призмённого резонатор определяются значением его угловой дисперсии, она характеризует угловое расстояние между близкими спектральными линиями. На Рисунке 7 приведена схема простейшего призмённого резонатора.

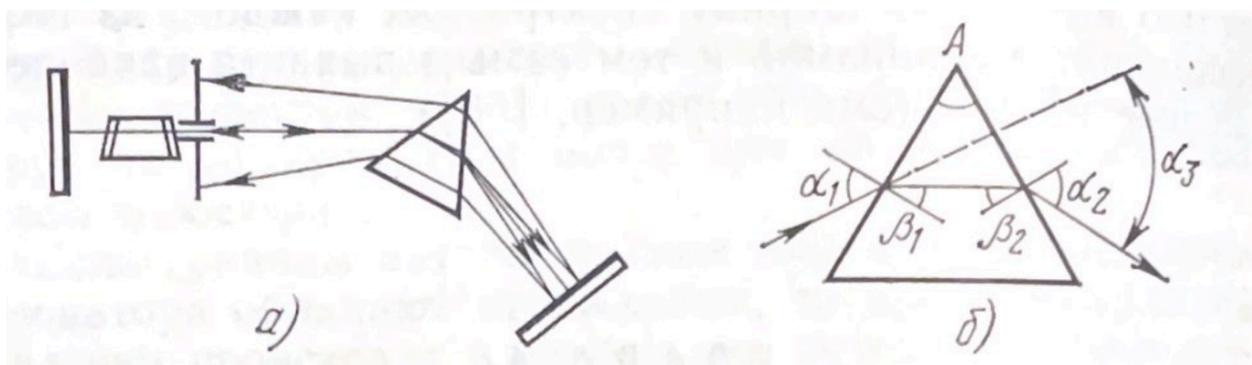


Рис. 7. Схема прохождения излучения через призмённый резонатор [19].

Дисперсия характеризует угловое расстояние между близкими спектральными линиями. Выражение для угловой дисперсии этого резонатора можно записать в следующем виде:

$$D_P = \frac{d\alpha_2}{d\lambda} + \frac{d\alpha_1}{d\lambda}, \quad (9)$$

где выражение

$$\frac{d\alpha_2}{d\lambda} = \left(\frac{dn}{d\lambda}\right) \sin A \cos \alpha_2 \cos \beta_1 \quad (10)$$

определяет угловую дисперсию излучения, падающего слева на призму, а выражение

$$\frac{d\alpha_1}{d\lambda} = \left(\frac{dn}{d\lambda}\right) \sin A \cos \alpha_1 \cos \beta_2 \quad (11)$$

угловую дисперсию излучения, падающего справа на призму. При выполнении условий $d\alpha_1 = d\alpha_2 = \alpha$ и $d\beta_1 = d\beta_2 = \beta$ выражение для дисперсии можно переписать в следующем виде:

$$D_P = 4 n^{-1} \frac{dn}{d\lambda} \operatorname{tg} \alpha. \quad (12)$$

Если для преломляющего угла выполняется условие $A = 2 \arcsin[(n^2 + 1)^{-1/2}]$, то на обоих гранях призмы выполняется закон Брюстера и формула (12) упрощается до вида:

$$D_P = 4 \frac{dn}{d\lambda}. \quad (13)$$

В таком случае угол минимального отклонения излучения после прохождения через призму будет равен $\alpha_3^{\min} = 180^\circ - 2A$. Угол поворота перестраиваемого (на Рисунке 7 правого) зеркала необходимый для перехода от одной длины волны к другой определяется половинным значением угловой дисперсии

резонатора, а полоса пропускания резонатора полной угловой дисперсией резонатора.

Помимо призм для создания перестраиваемых резонаторов широко используется и другой оптический элемент – дифракционная решетка. Как известно, при отражении от дифракционной решетки излучение с разной длиной волны отклоняется на разный угол. Выражение для дисперсии дифракционной решетки можно записать следующим образом:

$$D = \frac{d\varphi}{d\lambda} = \frac{m}{d \cos \varphi} = \frac{m}{\sqrt{d^2 - m^2 \lambda^2}}, \quad (14)$$

где m – порядок максимума, d – период решетки.

Разрешающая способность решетки характеризует минимальную величину $\Delta\lambda$ между двумя спектральными линиями, при которой они будут наблюдаться как отдельные. Разрешающей способностью дифракционной решетки называется величина $R \equiv \frac{\lambda}{\Delta\lambda}$, где $\Delta\lambda$ – разность длин волн, λ – средняя длина волны.

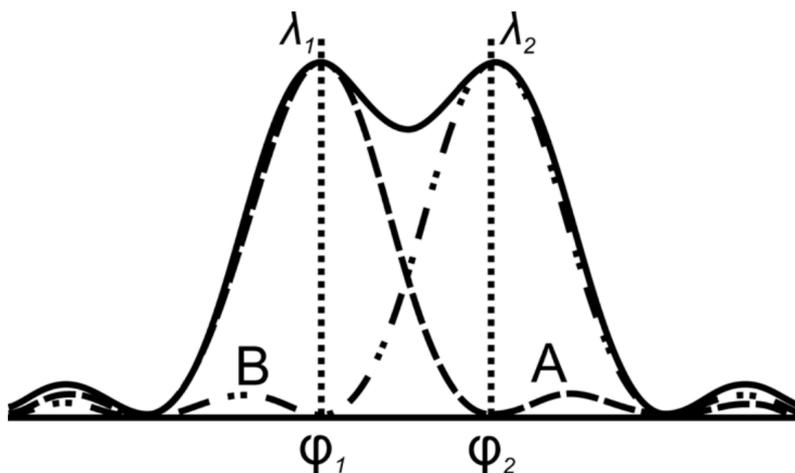


Рис. 8. Главные максимумы дифракционной решетки для разных длин волн.

Рассмотрим ситуацию на Рисунке 8, на приемнике наблюдаются два главных максимума для разных длин волн, будут ли они разрешены как два пика или сольются в один зависит от их ширины и расстояния между ними. Угловая

ширина главного максимума равна $\varphi = \frac{2\lambda}{L}$, где L – размер засвеченной излучением части дифракционной решетки. Для увеличения разрешающей способности дифракционной решетки максимумы стараются сделать как можно уже. Нетрудно заметить, что для этого необходимо увеличивать ширину пучка. Для этого удобнее всего перед дифракционной решеткой вводить в резонатор призмы, которые, как было сказано ранее, увеличивают сечение пучка.

2.8. Лазеры на красителях

Как уже говорилось ранее, эксимеры имеют однородно уширенную линию. Это позволяет получать на них узкополосное излучение напрямую, с помощью, в том числе, и дисперсионных резонаторов. Однако, узкополосное излучение можно получить, пропуская излучение эксимерного лазера через лазер на красителе. Также лазеры на красителе позволяют перестраивать излучение в достаточно широком диапазоне, гораздо более широком чем дисперсионные резонаторы.

Органические красители, сложные молекулярные системы с сопряженными двойными связями, обычно имеют сильные полосы поглощения в ультрафиолетовой или видимой области спектра. При возбуждении светом соответствующей длины волны они демонстрируют интенсивные широкополосные спектры флуоресценции со стоксовым сдвигом. Широкополосная структура поглощения и флуоресценции обусловлена большим количеством атомов, которые вносят вклад в спектроскопические свойства молекулы красителя, приводя к электронным уровням, состоящим из квазиконтинуума колебательных и вращательных подуровней.

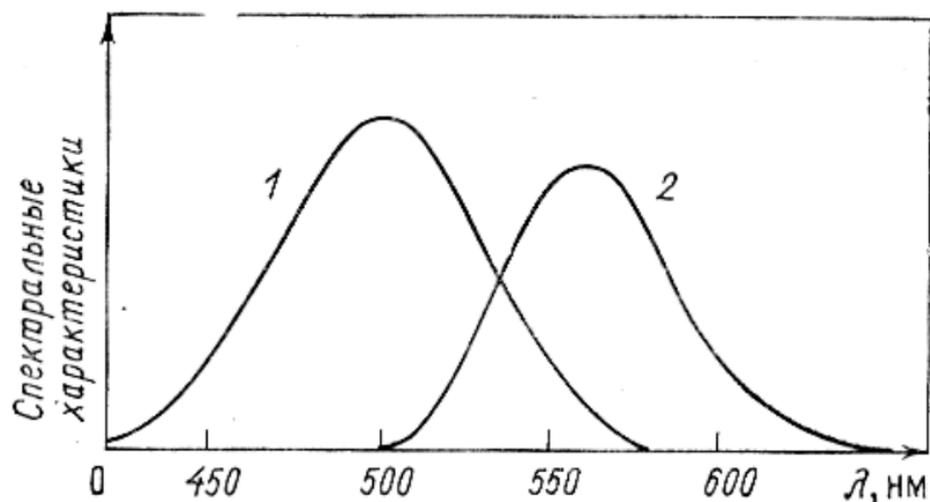


Рис. 9. Спектр поглощения (1) и флуоресценции (2) типичного лазерного красителя [20]. Широкий спектр флуоресценции красителя можно объяснить с помощью диаграммы энергетических уровней типичной молекулы красителя.

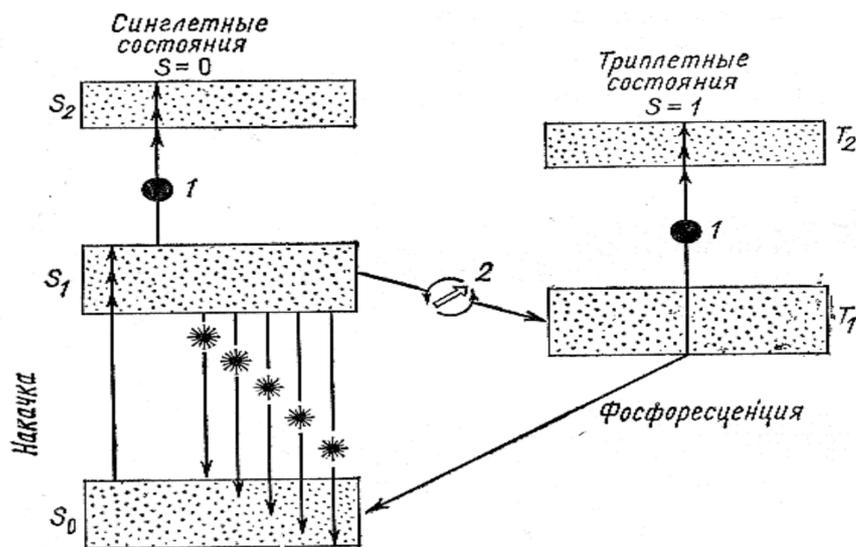


Рис. 10. Диаграмма энергетических уровней для лазера на красителях [20].

Молекула красителя имеет синглетные (S_0 , S_1 и S_2) и триплетные (T_1 и T_2) состояния (синглетные состояния – полный спин возбужденных электронов в молекуле равен нулю, а триплетные — спин равен единице.) Синглет-синглетными и триплет-триплетные переходы наиболее вероятны, менее вероятны синглет-триплетные и триплет-синглетные переходы. При накачке и поглощении фотонов молекула переходит из основного состояния S_0 в первое возбужденное состояние S_1 . Стимулированное излучение возникает при переходе между уровнями, расположенными вблизи дна состояния S_1 , и некоторыми колебательно-вращательным подуровнями состояния S_0 .

Состояния S_0 и S_1 содержат множество отдельных колебательно-вращательных подуровней и линия излучения, возникающая при переходах между ними, будет достаточно широкой. Триpletные состояния T_1 и T_2 не принимают участие в генерации излучения, однако, их наличие оказывает на него непосредственное влияние. Имеется малая вероятность перехода $S_1 \Rightarrow T_1$ (называемый интеркомбинационным переходом), а переход $T_1 \Rightarrow S_0$ (фосфоресценция) является запрещенным. Из-за этого при долгом воздействии света на молекулу молекулы накапливаются в состоянии T_1 . Однако, переход $T_1 \Rightarrow T_2$ является разрешенным, и его диапазон частот очень близок к диапазону рабочих частот лазера. Как только в результате переходов значительное число молекул накапливается в состоянии T_1 , поглощение на переходе $T_1 \Rightarrow T_2$ быстро уменьшает коэффициент усиления и генерация в итоге прекращается. По этой причине некоторые лазеры на красителях работают в импульсном режиме с длительностью импульса меньшей, чем время, которое требуется для достижения заметных значений населенности состояния T_1 . Для некоторых красителей может также иметь место поглощение на переходе в более высокие синглетные состояния ($S_1 \Rightarrow S_2$). Поэтому для генерации выбираются красители, у которых частоты этих переходов не лежат в рабочем диапазоне частот лазера.

Лазеры на красителях накачиваются оптическим методом. Источник излучения и краситель выбираются таким образом, чтобы частота источника была максимально близка к положению максимума полосы поглощения красителя. Широкая полоса флуоресценции органических красителей позволяет осуществлять перестройку длины волны генерации в пределах полосы усиления. Для большинства применений перестраиваемых лазеров на органических красителях необходимо спектральное сужение полосы лазерного излучения. Эксперименты по спектроскопии высокого разрешения могут даже потребовать выбора одной продольной моды резонатора. Поскольку рабочий переход лазера на органическом красителе однородно уширен, в принципе, возможно направить всю накопленную энергию в

узкополосную линию излучения. Методы обуздания линии генерации и перестройки длины волны лазера на красителе основаны на угловой дисперсии призм, дифракции на решетках или интерферометрических эффектов, вращении плоскости поляризации [21]. Лазер на красителе, используемый в моей работе, имеет дисперсионный резонатор, состоящий из системы призм и дифракционной решетки. Мотивация применения лазера на красителе была обусловлена возможностью получения узкого спектра излучения в видимом диапазоне с последующим удвоением частоты и усилением узкополосного излучения в K₂Cr₂O₇ лазере для последующей ВКР перестройки.

2.9. Лазерные усилители

Лазерное излучение можно эффективно усиливать. Лазерные усилители способны усиливать сигнал на несущей частоте за счет вынужденных переходов в среде с инверсной населенностью уровней. В простейшем случае лазерные усилители представляют из себя рабочую среду лазера. Идеальным усилителем можно считать усилитель, который на своей полосе усиления имеет постоянный коэффициент усиления, а за ее пределами его коэффициент усиления равен 0. Коэффициент усиления реального усилителя же зависит от частоты.

Пусть E_2 и N_2 энергия и заселенность верхнего энергетического уровня, а E_1 и N_1 нижнего. Тогда за единицу времени в единичном объеме активной среды произойдет WN_2 вынужденных перехода с верхнего энергетического уровня, сопровождающихся излучением света, и WN_1 вынужденных перехода с нижнего энергетического уровня, сопровождающихся поглощением света, где W – вероятность перехода. Очевидно, что для усиления волны необходимо, чтобы $N_2 > N_1$. То есть, для получения усиления необходимо создать инверсную населенность уровней, это называется накачкой. При прохождении через элемент среды толщиной z с сечением единичной площади за 1 с прирост интенсивности световой волны будет равен

$$\Delta I = \sigma I(N_2 - N_1) * \Delta z, \quad (15)$$

а уравнение для изменения интенсивности света при его прохождении через усиливающую среду запишется следующим образом

$$\frac{1}{I} \frac{dI}{dz} = \sigma(N_2 - N_1) \equiv \alpha, \quad (16)$$

где α – дифференциальный коэффициент усиления. Как можно заметить, коэффициент перехода определяется сечением перехода, величина которого определяется свойствами спектроскопическими частиц и разностью населенности уровней.

Подобное усиление характерно для относительно слабой световой волны, при которой не происходит насыщение усиления. При распространении по усиливающей среде мощная волна будет стремиться выровнять населенность уровней рабочего перехода, и, тем самым, уменьшать усиление. Выражение для интенсивности насыщения можно записать следующим образом:

$$I_{sat} = \frac{\hbar\omega}{\sigma\tau_{eff}} \Leftrightarrow \frac{I_{sat}}{\hbar\omega} \sigma\tau_{eff} = 1. \quad (17)$$

τ_{eff} – эффективное время жизни энергетического уровня. При взаимодействии среды со световой волной с интенсивностью I_{sat} в течение времени τ_{eff} , вероятность перехода возбужденной частицы на нижний уровень стремится к единице. То есть, существенно уменьшается заселенность верхнего уровня и возможность для усиления. Коэффициент усиления интенсивности в среде с однородным уширением линии при учете насыщения равен:

$$\alpha = \frac{\alpha_0}{1 + \frac{I}{I_{sat}}} \quad (18)$$

Также следует учитывать, что при распространении света в любой среде имеется линейной поглощение, описываемое законом Бугера. Вводя безразмерную интенсивность $J \equiv I/I_{sat}$ и учитывая как процесс линейного поглощения, так и процесс усиления в среде получим итоговое уравнение для интенсивности волны при ее прохождении через усиливающую среду:

$$\frac{dJ}{dz} = -\beta J + \frac{\alpha_0}{1+J} * J, \quad (19)$$

где β – коэффициент поглощения.

При малых уровнях интенсивности входного сигнала ($J \ll 1$) из уравнения (19) получаем:

$$\frac{dJ}{dz} \approx (\alpha_0 - \beta) * J, \quad (20)$$

то есть экспоненциальный рост интенсивности при прохождении усиливающей среды. При однородном уширении лоренцев профиль определяет полосу усиления среды. Ширина линии лоренца определяет диапазон частот, в котором коэффициент усиления составляет как минимум половину от максимального. Как уже обсуждалось в предыдущем параграфе, при однородном уширении частотные характеристики среды в целом совпадают с частотными характеристиками с каждым отдельным атомом этой среды, поэтому при усилении наблюдается равномерная деформация спектральной линии.

При сильном насыщении ($J \gg 1$) зависимость становится линейной. В отсутствие поглощения ее можно записать следующим образом

$$\frac{dJ}{dz} \approx \alpha_0. \quad (21)$$

Такой вид зависимость легко объяснить: с каждого единичного объема снимается вся доступная для усиления мощность.

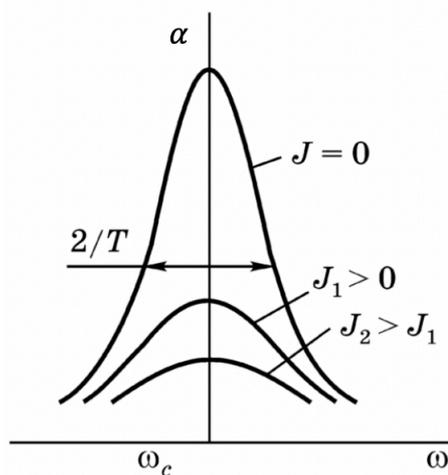


Рис. 11. Зависимость коэффициента усиления α активной среды с однородным уширением линии лазерного перехода от частоты ω и интенсивности входного сигнала J на частоте ω_c (ширина по полувысоте $\Delta\omega_D = 1/T$, T - время жизни уровня) [22].

При усилении неоднородно уширенной линии на кривой усиления появляются провалы. Неоднородное уширение подразумевает, что центральная частота перехода не единственная для всей среды. Центральные частоты переходов атомов среды распределены по некоторому закону, а усиливаемый сигнал взаимодействует только с той группой атомов, центральные частоты которых близки к частоте сигнала.

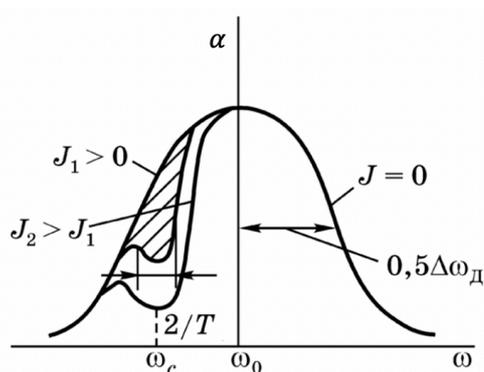


Рис. 12. Зависимость коэффициента усиления α активной среды с неоднородным уширением линии лазерного перехода от частоты ω и интенсивности входного сигнала J на частоте ω_c [22]. Ширина провала растет с увеличением интенсивности входного сигнала и приблизительно равна ширине однородной части неоднородно уширенной линии.

У используемого в моей работе лазера однородно уширенная спектральная линия и, следовательно, его излучение можно эффективно усиливать. Типичная схема усиления эксимерных лазеров представлена на Рисунке 13, подобная схема использовалась и в экспериментах в моей работе.

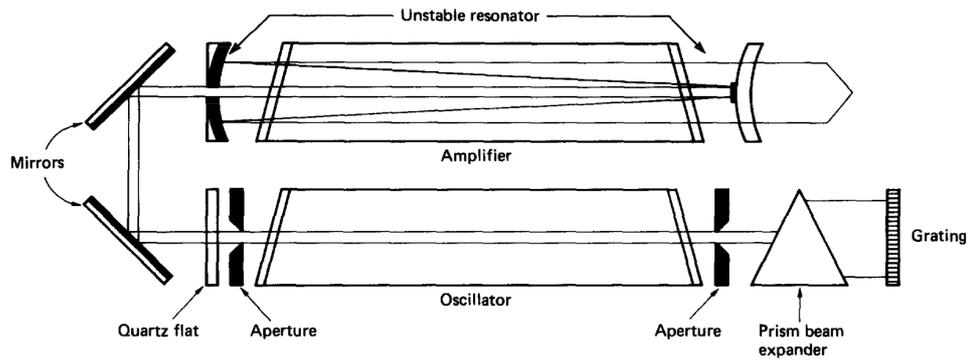


Рис. 13. Два эксимерных лазера, настроенных для работы в режиме задающий генератор-регенеративный усилитель [23].

Усилитель оборудован конфокальным неустойчивым резонатором с положительной ветвью типа Кассегрена (телескоп Кассегрена), используемый в обратном направлении. Он увеличивает размеры инжектируемого луча так, что он заполняет весь объем усилителя, когда последний срабатывает, уменьшение расходимости луча обратно пропорционально коэффициенту увеличения. Параметры неустойчивого резонатора выбираются таким образом, чтобы затравочный сигнал поддерживал формирование предпочтительной поперечной моды. Предпочтительным режимом является режим с наименьшими потерями.

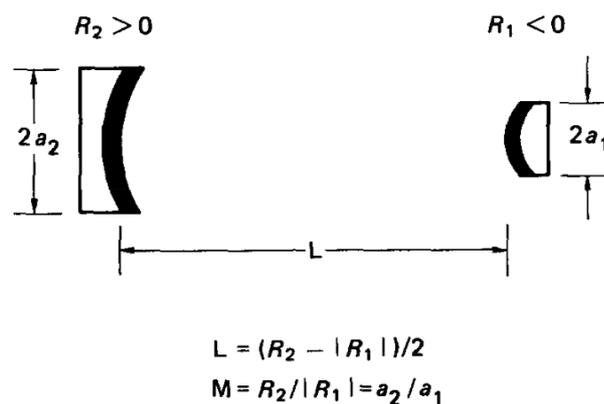


Рис. 14. Схема конфокального неустойчивого резонатора с положительной ветвью [23].

Минимальные возможные потери можно оценить величиной $\delta \approx (1 - 1/M^2)^2$. Неустойчивые резонаторы обеспечивают наилучшую селекцию поперечных мод и наименьшие потери при полуцелых эквивалентных числах Френеля $N_{eq} = \frac{a_1^2}{\lambda L} \frac{M-1}{2}$.

3. Экспериментальная часть

3.1. Оптимизация эксимерного лазера LAMBDA PHYSIK LPX 210i для работы на KrCl

В данном параграфе описаны шаги, которые были предприняты для достижения максимальной энергии генерации лазера LAMBDA PHYSIK LPX 210i при работе на KrCl. Данный лазер изначально был оптимизирован для работы на XeCl и, поскольку KrCl редко используется в качестве активной среды для эксимерных лазеров, никакой доступной информации для данной модели лазера по работе на KrCl не было. Лазер оптимизировался по двум параметрам: зарядное напряжение и давление рабочей смеси.

Для зажигания объемного разряда в рабочей среде газового лазера необходима предварительная ионизация. Помимо этого, необходимо добиться максимальной однородности электрического поля в разрядном промежутке. Для этого применяются электроды однородного поля специальной формы, наибольшее распространение получили профили Чанга и Роговского. Все схемы предыонизации обычно включаются заранее, до основного разряда накачки. В зависимости от состава смеси и особенностей конструкции конкретного лазера, время, необходимое для достижения хорошей предыонизации, варьируется. Этого времени должно хватать для накопления достаточного количества затравочных электронов и выравнивания их концентрации по всему объему рабочей смеси.

Для работы эксимерных лазеров требуется создание короткого (10 – 100 нс) и мощного (более 100 МВт) импульса. Создание подобных импульсов является достаточно сложной задачей, для решения которой создаются специальные электрические системы. Общий принцип работы таких систем заключается в накоплении необходимого количества энергии в запасующих конденсаторах и последующей быстрой разрядке в рабочую смесь лазера. Схема электроразрядной цепи лазеров, используемых в моей работе, т.н. LC-инвертора представлена на Рисунке 15.

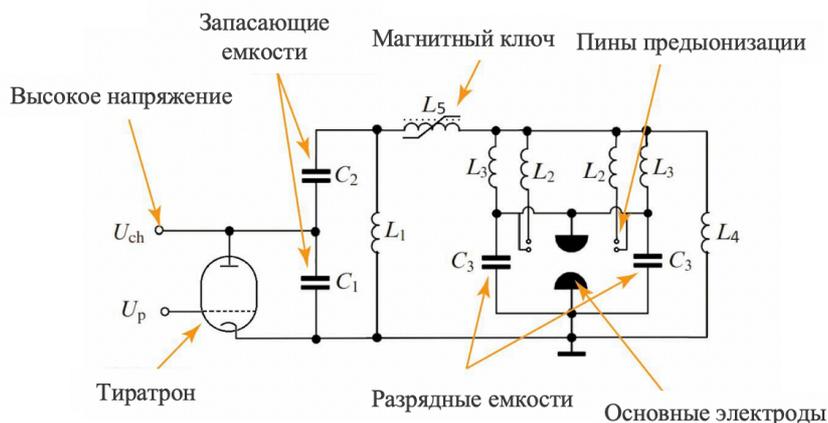


Рис. 15. Электроразрядная схема KrCl лазера.

Накопление энергии начинается с зарядки запасяющих конденсаторов C_1 , C_2 . Далее, после срабатывания тиратрона, происходит смена полярности конденсатора C_1 , в результате чего на выходе C_2 получается удвоенное напряжение. Емкости C_1 и C_2 , расположенные последовательно, перезаряжаются на емкости C_3 через искровую предыонизацию. Катушки индуктивности L_2 , L_3 необходимы для равномерной подачи напряжения на пины предыонизации и зарядки конденсаторов C_3 . На Рисунке 15 представлена зависимость энергии генерации от зарядного напряжения для лазера Lambda Physik LPX 210i, работающего на смеси 0.1% ($\text{HCl} + \text{H}_2$)/10% Kr /89.9% Ne, длительность лазерного импульса составляла 15 нс.

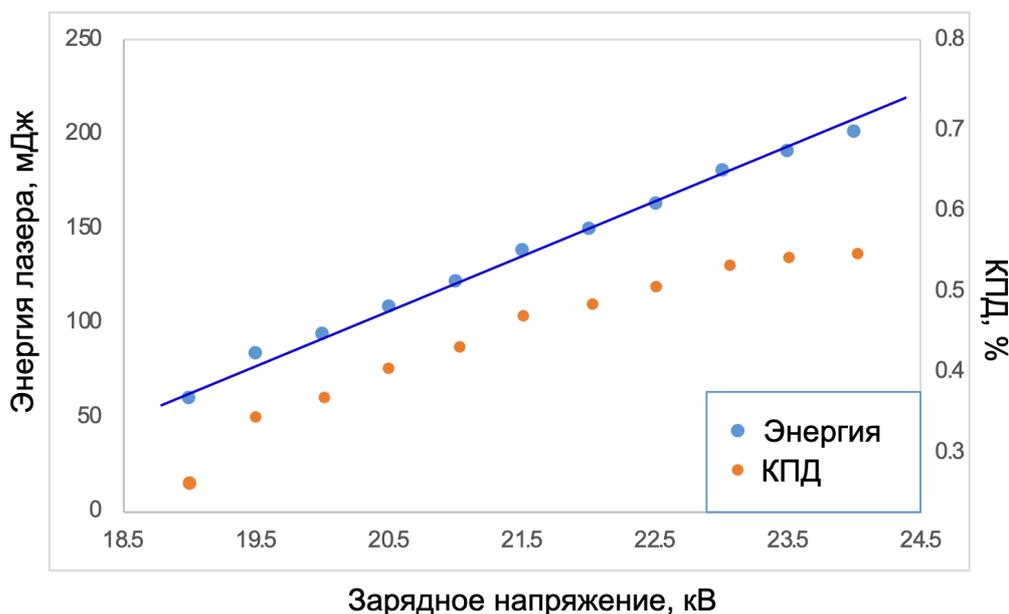


Рис. 16. Зависимость энергии генерации и КПД лазера от зарядного напряжения.

Как можно увидеть на графике, при увеличении напряжения на запасающих конденсаторах в диапазоне 19-24 кВ энергия генерации увеличилась с ~60 до 210 мДж. Также на Рисунке 16 видно, что с увеличением зарядного напряжения, т.е. удельной мощности накачки рос и КПД лазера (соотношение энергии, запасенной на зарядных ёмкостях C_1 и C_2 к энергии лазерного импульса). Однако, по характеру данного графика, можно говорить о том, что для достижения оптимального режима работы требуется еще большее зарядное напряжение. К сожалению, дальнейшее увеличение напряжения было ограничено программным обеспечением лазера. Данный лазер изначально был оптимизирован для работы на ХеС1, который требует меньшей удельной мощности накачки, поэтому полученный результат был достаточно ожидаемым.

В ходе работ по оптимизации данного лазера проводились эксперименты по исследованию зависимости выходной энергии лазера от абсолютного давления рабочей смеси.

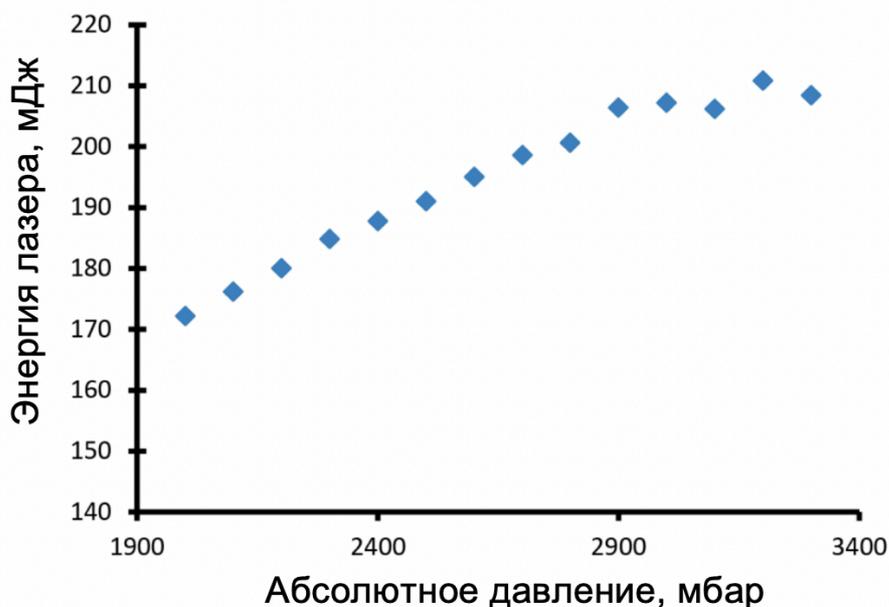


Рис. 17. Зависимость энергии генерации от абсолютного давления рабочей смеси.

Исследовались смеси с различным содержанием Kr и HCl. Небольшое добавление водорода к HCl ($H_2:HCl = 1:5$) необходимо для регенерации хлористого водорода в смеси во время работы лазера. Как видно на Рисунке 16 при увеличении абсолютного давления в смеси с 2000 мбар до 3300 мбар энергия генерации монотонно возрастала от 165 до 210 мДж. Дальнейшее увеличение давления смеси было ограничено прочностью лазерной камеры. Наибольшая энергия генерации 210 мДж наблюдалась на смеси 0,1% (HCl+H₂)/10% Kr/ 89,9% Ne. Данный результат также весьма ожидаем, так как процесс образования молекул KrCl является трехчастичным и его вероятность возрастает с увеличением.

3.2. Оптимизация эксимерного лазера ЦФП ИОФАН Модель 1701 для работы на KrCl

Аналогичные работы по оптимизации работы на KrCl были проведены для лазера ЦФП ИОФАН Модель 1701, который предполагалось использовать для генерации узкополосного излучения для инъекции излучения в лазер Lambda Physik LPX 210i. Данный лазер имеет силовую цепь, аналогичную представленной на Рисунке 15. В рамках нашей работы была проведена модернизация системы накачки лазера 1701. Емкость ударных конденсаторов была увеличена с 12 нФ до 24 нФ, а емкость запасяющих конденсаторов увеличена с 38 нФ до 92 нФ. Также поменялось соотношение емкостей конденсаторов C₁ и C₂. В оригинальной конструкции отношение их емкостей равнялось 1:1, следуя работе [24] оно было изменено на 2:1. К сожалению, модернизация не дала какого-либо выигрыша по выходной энергии, но при этом изменился характер зависимости от зарядного напряжения. Как до, так и после лазер генерировал энергию порядка 40 мДж. По всей видимости, причина отсутствия влияния запасенной на конденсаторах C₁-C₂ энергии на выходную энергию лазера связано с плохой работой системы предыонизации в лазере 1701. Разряд в KrCl неустойчив и для получения объемного разряда необходима лучшая, по сравнению с другими средами, предыонизация разрядного промежутка. Соответственно, доля энергии, идущая на объемную

накачку разрядного промежутка, ограничивается контракцией (переходом в пробойную стадию) разряда. По всей видимости, чтобы раскрыть потенциал модернизации LC-инвертора лазера 1701, необходимо переделать систему предыонизации. Следовательно, увеличение зарядного напряжения в нашем случае не привело к увеличению удельной мощности накачки рабочей смеси и увеличению энергии генерации.

С помощью лазера 1701, работающего на оптимальной смеси 0.1% (HCl+H₂)/10% Kr /89.9% Ne с плоским резонатором, была получена выходная энергия 40 мДж при длительности импульса 10 нс. После чего были проведены работы по обузанию линии генерации этого лазера за счет спектрально-селективного резонатора. Для этого плоский резонатор был заменен на перестраиваемый, схема которого показана на Рисунке 18.

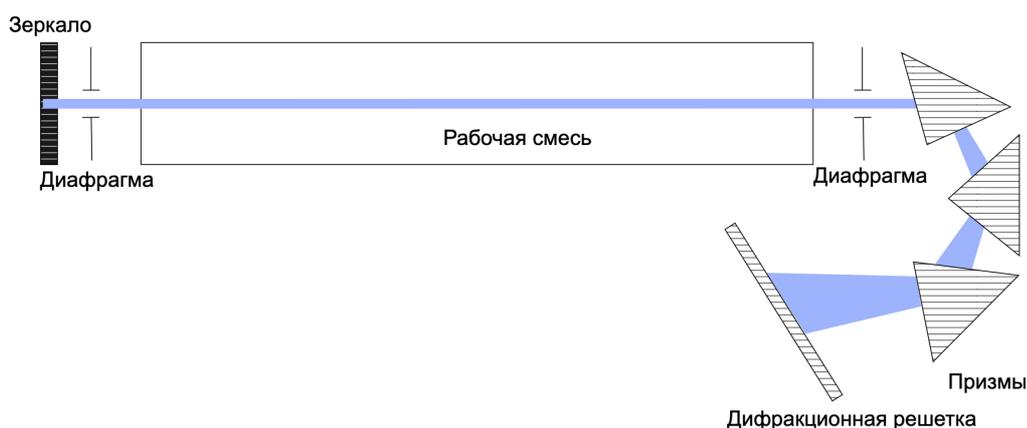


Рис. 18. Схема перестраиваемого резонатора для лазера ЦФП ИОФАН Модель 1701. Одно из зеркал было заменено на 100%, а другое на систему из трех призм и дифракционной решетки. Призмы были внедрены для расширения пучка, дифракционная решетка непосредственно для селекции излучения на выбранной длине волны. Однако, после этих изменений устойчивую генерацию получить не удалось. Это связано с тем, что на KrCl генерируется относительно короткий импульс, ~порядка 10-12 нс. С учетом того, что длина лазерного резонатора ~1 м, за время генерации излучение успевает сделать

порядка 3 обходов резонатора, чего недостаточно для развития генерации узкополосного излучения.

Также в данном лазере была переделана система управления запуском тиратрона, для возможности его синхронизации с лазером Lambda Physik LPX 210i. В оригинальной схеме излучение относительно внешнего синхроимпульса выходило с большой задержкой ~ 20 мс и большим джиттером. Это было обусловлено тем, что после прихода внешнего синхроимпульса штатная система запускала импульсную зарядку конденсаторов, а затем происходила коммутация тиратрона. Чтобы уменьшить задержку, импульсный заряд запасующих емкостей был заменен на постоянную подпитку источником высокого напряжения на базе блока для поддержания дуги для CO₂ лазера. Запуск тиратрона осуществлялся с помощью генератора синхроимпульсов BNC 575 Series Pulse Generator, который в свою очередь запускал синхронизатор СП-2, выдававший импульс 400 В на повышающий трансформатор. Это позволило существенно синхронизовать запуск лазера Lambda Physik LPX 210i с запуском лазера ЦФП ИОФАН Модель 1701 с джиттером ~ 20 нс.

3.3. Получение узкополосного излучения на длине волны 222 нм

По причинам, описанным в предыдущем параграфе, получить узкополосное излучение, необходимое для проведения дальнейших экспериментов по ВКР перестройке длины волны, непосредственно на эксимерном лазере не удалось. Альтернативным подходом для получения узкой линии является использование лазера на красителе Lambda Physik FL 3002, он позволяет получать видимое излучение в диапазоне 340-1000 нм. В лазере 1701 рабочая смесь была заменена с KrCl на XeCl, длина волны его излучения стала 308 нм, а энергия генерации порядка 120 мДж. Для получения излучения на длине волны 444 нм использовался краситель Coumarin 120, генерирующий излучение в диапазоне от 420 до 460 нм.

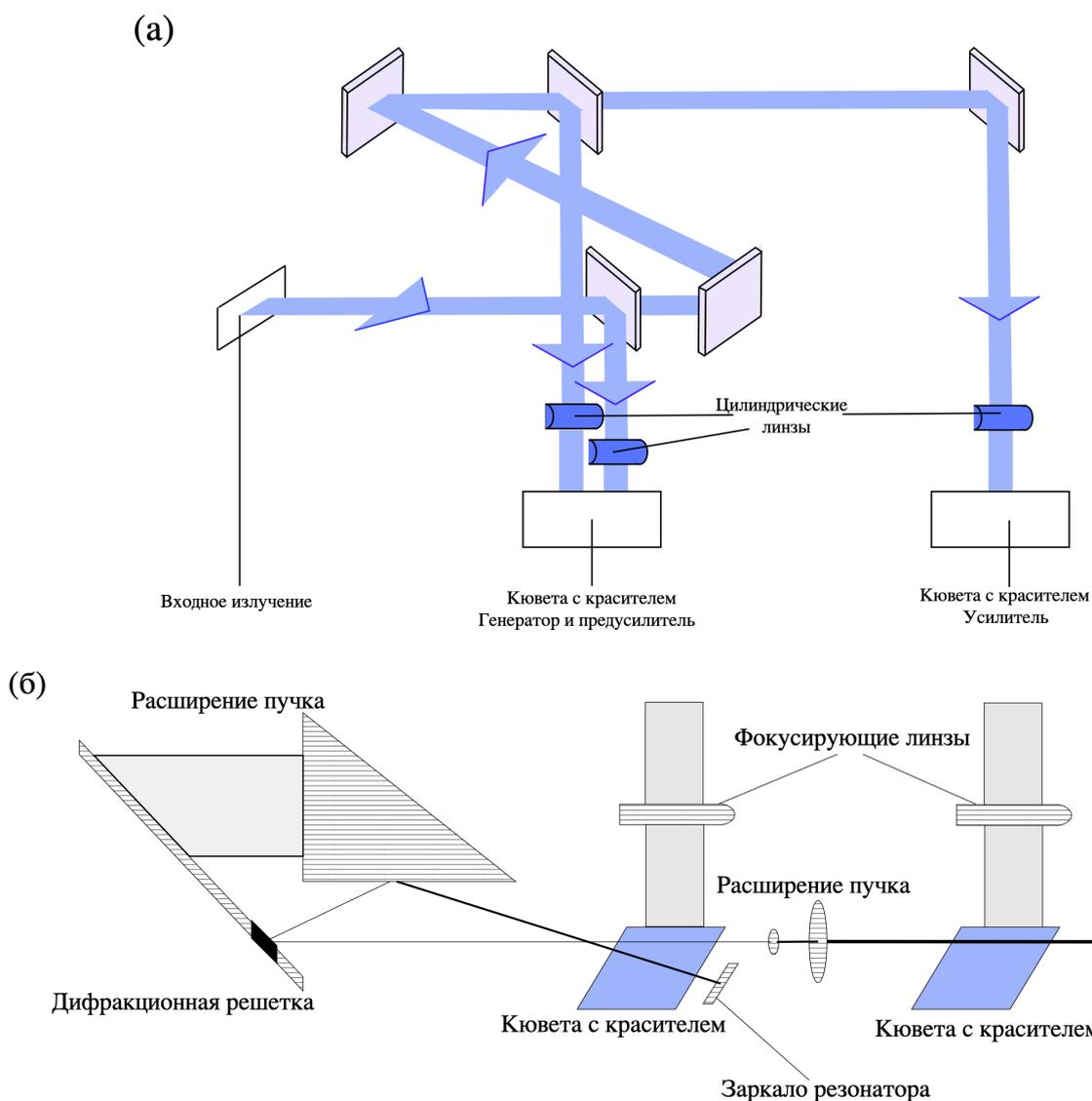


Рис. 19. Схема накачки лазера на красителе (а), схема резонатора и усилителя лазера (б) на красителе Lambda Physik FL 3002 Dye Laser.

Узкая линия достигается за счет наличия у лазера на красителе дисперсионного спектрально селективного резонатора, он же позволяет перестраивать излучения в пределах полосы усиления красителя. Резонатор состоит из дифракционной решетки, системы призм и 100% зеркала. Из резонатора выводится малая часть излучения, отражающегося от призмы. После прохождения резонатора, излучение попадает в усилитель, по схеме, показанной на Рисунке 19. Паспортная ширина спектра выходного излучения лазера на красителе составляет $0,2 \text{ см}^{-1}$, в то время как ширина спектра ЦФП ИОФАН Модель 1701 на $\text{K}r\text{Cl}$ составляла порядка 41 см^{-1} . Для получения из

излучения лазера на красителе излучения на требуемой длине волны 222 нм была создана оптическая система, схема которой показана на Рисунке 20.

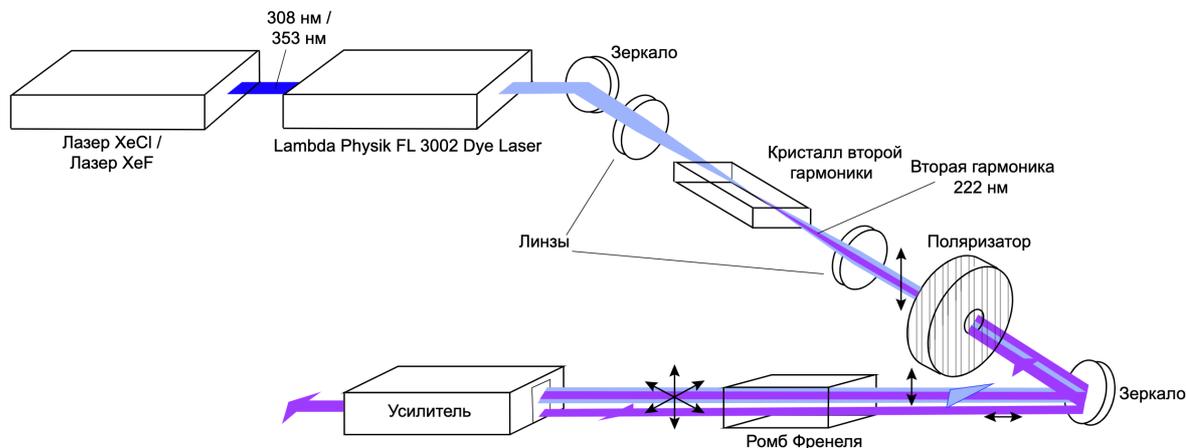


Рис. 20. Схема оптической системы для получения второй гармоники.

Излучение фокусировалось линзами с фокусными расстояниями от 10 см до 50 см в нелинейный оптический кристалл ВВО, в котором происходила генерация второй гармоники (222 нм). Из лазера выходило вертикально поляризованное излучение, после прохождения кристалла оно попадало в поляризатор и пропусклось им в прямом направлении. Далее излучение попадало на ромб Френеля, после которого становилось поляризованным по кругу. После этого предполагается, что излучение будет усиливаться в лазере Lambda Physik LPX 210i, работающем на KCl. Система с поляризатором и ромбом Френеля понадобилась для того, чтобы предотвратить возвращение излучения обратно в лазер на красителе. При усилении излучение выходит как в прямом, так и в обратном направлениях, однако, после прохождения ромба Френеля во второй раз оно становится уже горизонтально поляризованным и не проходит через поляризатор к кристаллу второй гармоники. Таким образом, с помощью оптической системы, состоящей из XeCl лазера, лазера на красителе и кристалла второй гармоники была получена узкая линия на длине волны 222 нм.

Однако, в этой схеме энергия выходного излучения второй гармоники до усиления оказалась крайне мала, порядка 0,15 мДж. Краситель, используемый в лазере, был грязным и в нем наблюдалось большое поглощение. Было

принято решение заменить лазер накачки на лазер Lambda Physik LPX 210i, работающем на XeF с длиной волны 353 нм. Ожидания, что это нововведение увеличит энергию результирующего излучения, подкреплялись двумя фактами. В первую очередь, лазер Lambda Physik LPX 210i является более мощным и его средняя энергия генерации составляет до 400 мДж. Также у используемого красителя Coumarin 120 максимум полосы поглощения, как видно на Рисунке 21, приходится на длины волн близкие к 353 нм, а не 308 нм (XeCl). То есть, при накачке на длине волны 353 нм оптимальная концентрация красителя меньше и, следовательно, на результате работы будет меньше сказываться его загрязненность.

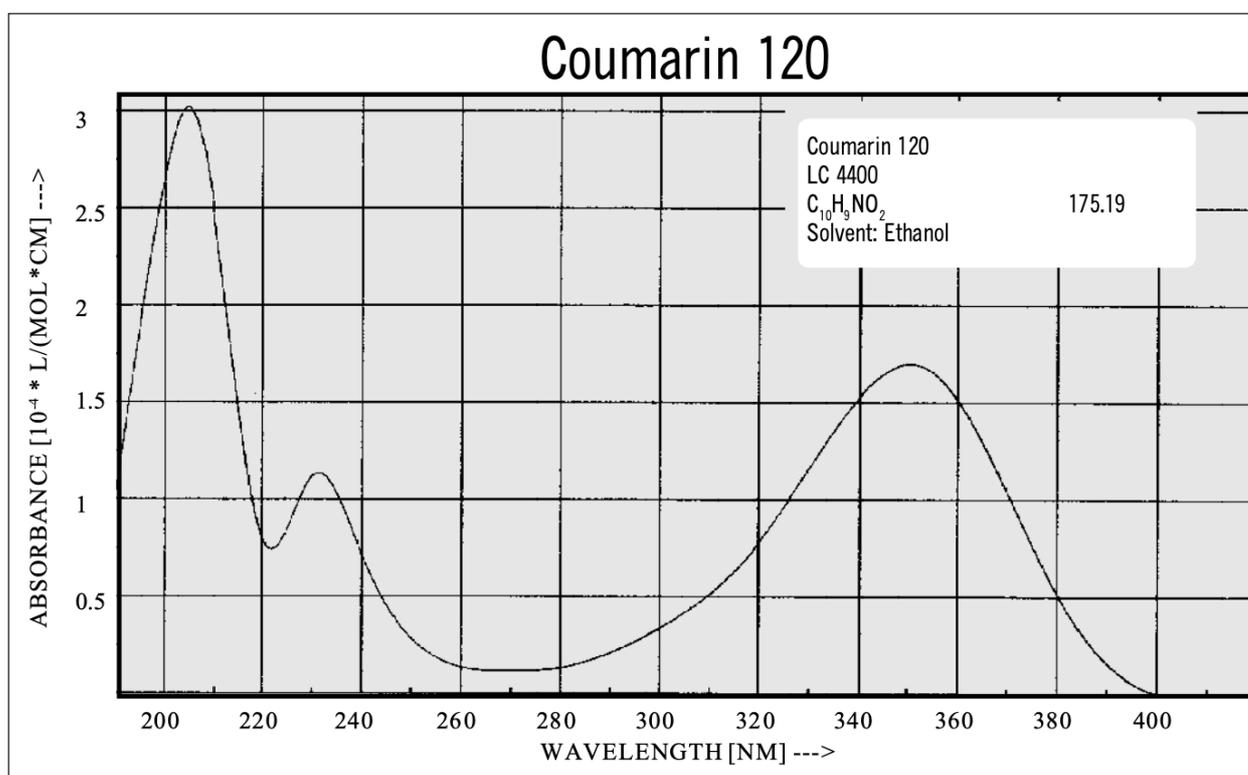


Рис. 21. Спектр поглощения красителя Coumarin 120.

При накачке XeF удалось получить устойчивую генерацию второй гармоники лазера на красителе (спектр приведен на Рисунке 22) с шириной спектра $0,4 \text{ см}^{-1}$, энергией $\sim 100 \text{ мкДж}$ и возможностью перестройки в широком диапазоне полосы усиления красителя. В дальнейшем планируется использовать это излучение как затравочное при усилении в LPX 210i.

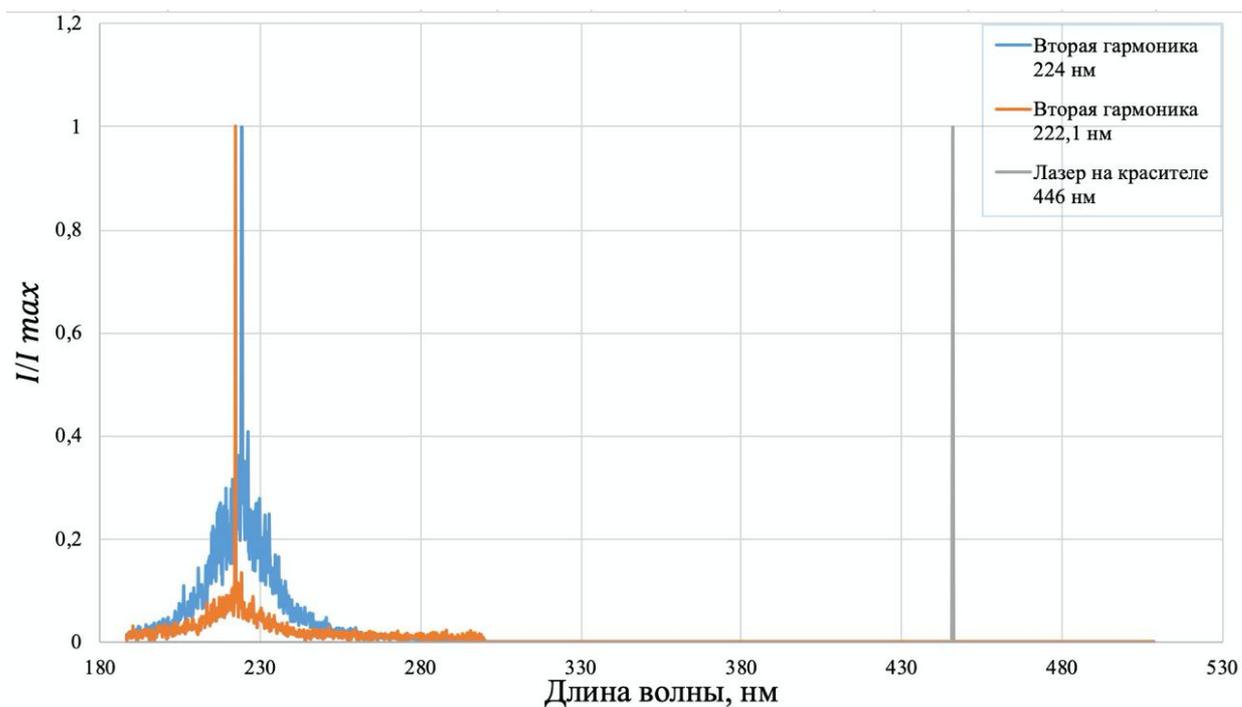


Рис. 22. Спектр лазера на красителе и его второй гармоники.

3.4. Измерение сечения многофотонной ионизации молекулярного кислорода на длине волны 222 нм

Используя полученный мощный источник на длине волны 222 нм, а именно лазер LPX 210i было проведено исследование многофотонной ионизации компонентов воздуха на этой длине волны. Поскольку длина волны 222 нм является достаточно редкой, информация о характере взаимодействия излучения на данной длине с молекулярным кислородом в литературе отсутствует. Ввиду того, что основное направление исследований предполагает непосредственное взаимодействие излучения с длиной волны 222 нм с воздухом и молекулярным кислородом, уточнение тонкостей процессов взаимодействия являлось актуальной задачей.

KrCl лазер (Lambda Physik LPX 210i) работал при полном давлении активной среды 3,3 атм и составом смеси 0,1% HCl/10% Kr/ 89,9% Ne. Лазер работал с внешним неустойчивым резонатором типа Кассегрена. На Рисунке 23 приведена схема экспериментальной установки.

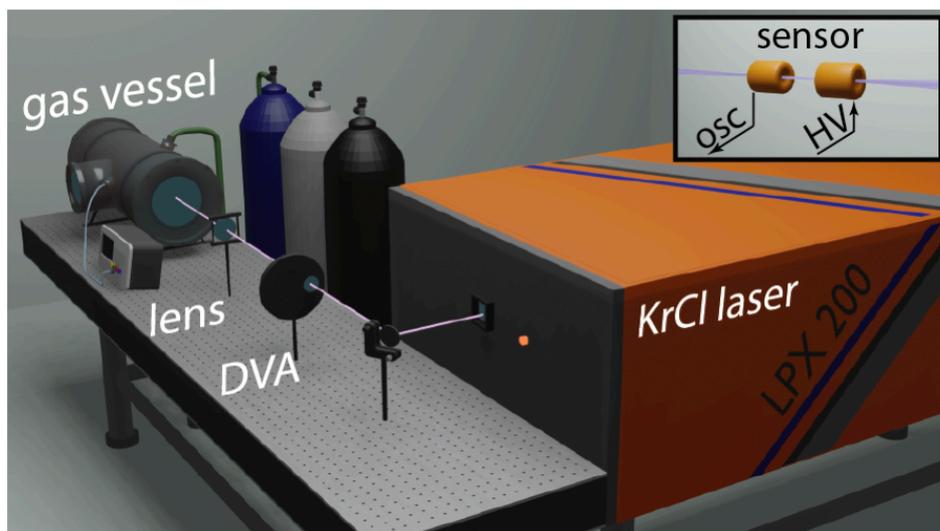


Рис. 23. Схема экспериментальной установки для измерения сечения многофотонной ионизации молекулярного кислорода.

Лазер генерировал импульсы с длиной волны 222 нм. С выходной энергией $E \sim 100 - 200$ мДж и длительность импульса на полувысоте 14 нс. Была возможность изменять энергию лазерного импульса на два порядка с помощью дифракционного регулируемого аттенюатора (DVA). УФ-излучение фокусировалось линзой с $F = 1$ м или 0,6 м в фотоэлектрический датчик. Датчик состоит из двух электродов, один из которых находится под высоким напряжением, а другой подключен к осциллографу. Основная идея датчика заключается в том, что фотоионизационная плазма замыкает электрическую цепь между высоковольтным и собирающим трубчатым электродами, а ток (измеряемый осциллографом TDS 3054C 500 МГц) можно использовать для отслеживания плотности заряженных частиц, создаваемых лазером. Поскольку подвижность электронов на три порядка больше, чем у ионов, измеренный ток дает разрешенную по времени плотность электронов, интегрированную по сечению лазерного импульса. Датчик обеспечивает временное разрешение ~ 2 нс. Все эксперименты проводились в вакуумной камере, заполненной исследуемым газом при комнатной температуре, $T = 21^\circ\text{C}$.

Типичные экспериментальные осциллограммы приведены на Рисунке 24.

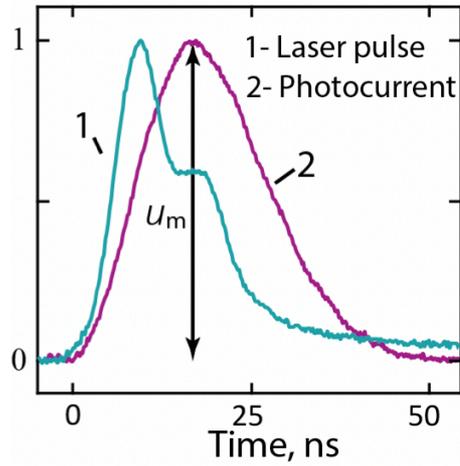


Рис. 24. Осциллограммы лазерного импульса и фототока в O_2 .

В работе [25] подробно обсуждается, что при исследуемых нами концентрациях электронов плазму можно рассматривать как омический проводник, с переменным сопротивлением канала $R(t)$. Из $R(t)$ можно найти удельную проводимость плазмы и соответствующую ей концентрация электронов. Связь между сопротивлением $R(t)$ и напряжением на входе осциллографа $u_{вх}(t)$ можно записать в следующем виде:

$$u_{вх}(t) = \frac{R_{осц} U_{зар}}{R(t)}, \quad (23)$$

где $R_{осц} = 50$ Ом – входное сопротивление осциллографа, $U_{зар} = 2 - 3$ кВ – зарядное напряжение на высоковольтном электроде. Удельная проводимость плазмы связана с измеряемым сигналом фототока следующим образом:

$$\sigma_{max} = \frac{u_{max} L}{U_{зар} R_{осц} \int_0^{\infty} f^K(x, y) dx dy}, \quad (24)$$

где K – порядок ионизации, u_{max} – амплитуда (максимальное значение) $u_{вх}(t)$, $L = 0,8$ см – ширина межэлектродного промежутка, $f(x, y)$ – нормализованная пространственная функция распределения лазерного импульса. Зная проводимость плазмы, концентрацию электронов нетрудно

определить по формуле $N_e^0 = \sigma_{max}/e\mu_0$, где e – элементарный заряд, $\mu_0 = 1200 \frac{\text{см}^2}{\text{В}\cdot\text{с}}$ – подвижность электронов в молекулярном кислороде.

Как можно заметить на Рисунке 24, фотоэлектронный ток увеличивается в течение первых ~ 20 нс лазерного импульса, затем начинает уменьшаться и полностью исчезает после окончания лазерного импульса.

На Рисунке 25 представлена зависимость плотности электронов от интенсивности лазерного излучения, каждая точка на графике получена путем усреднения по 10 лазерным импульсам.

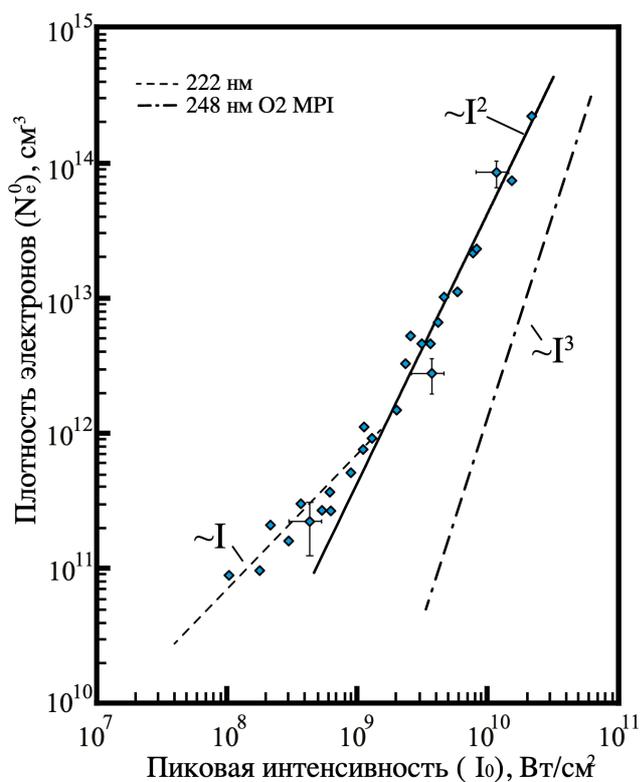


Рис. 25. Зависимость пиковой плотности электронов от пиковой интенсивности лазерного излучения в O_2 .

На Рисунке 19 при малых интенсивностях лазерного излучения наблюдается линейная зависимость, однако, при дальнейшем увеличении интенсивности, зависимость приобретает квадратичный характер. Лазер генерирует излучение с центром на $\lambda = 222,6$ нм со спектральной шириной $\Delta\lambda = 0,6$ нм (Рисунок 26), то есть энергия двух фотонов находится в диапазоне от 11,12 до 11,17 эВ, в то время как потенциал ионизации молекулярного кислорода составляет порядка 12,06 эВ. Следовательно, в отсутствии

резонансных процессов, для ионизации требуется три фотона. Однако, как линейная, так и квадратичная зависимости, очевидно, не укладываются в прямую трехфотонную ионизацию молекулярного кислорода.

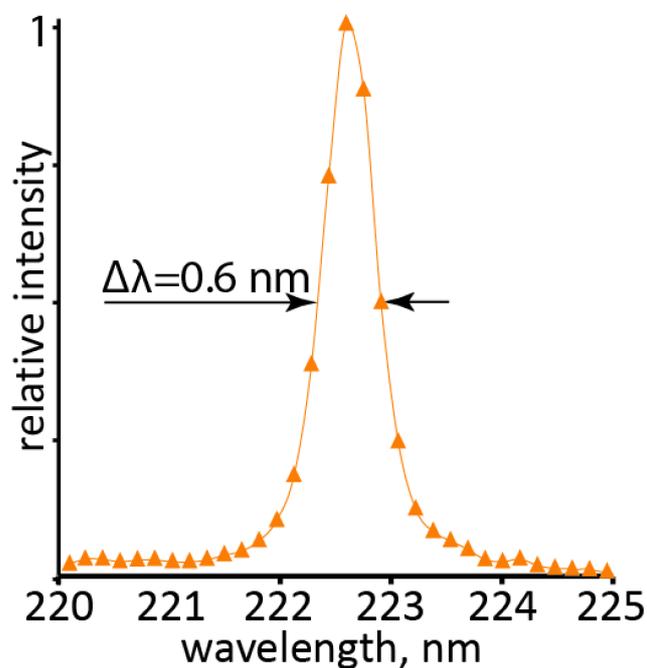


Рис. 26. Спектр лазерного излучения.

Линейная часть, вероятно, является результатом ионизации примесей, содержащихся в исследуемом газе в малых количествах. Скорее всего, каких-либо органических примесей, для ионизации которых вполне достаточно одного фотона. Квадратичная же часть зависимости является результатом (2+1) REMPI (англ. resonance-enhanced multiphoton ionization) ионизации молекул кислорода. Резонансная ионизация возникает, когда энергия некоторого числа квантов становится равной энергии какого-либо квазистационарного состояния электрона в атоме, в этом случае возникает промежуточный резонанс. Поскольку наблюдается квадратичная зависимость концентрации электронов от интенсивности лазерного излучения, то есть снижение порядка степени ионизации с 3 до 2, скорость однофотонной ионизации промежуточного возбужденного уровня оказывается выше скорости преддиссоциации. Подобная высокая эффективность однофотонного перехода из возбужденного состояния, вероятно, является следствием

однофотонного резонанса для перехода из возбужденного состояния молекулярного кислорода в состояние молекулярного иона.

На основе экспериментальных данных было вычислено сечения (2+1) REMPI ионизации кислорода. Вычисления производились по формуле $N_e^0 = N_{O_2}^0 \sigma_{O_2}^{(2)} I_0^2 \int_0^{t'} g^2(t) dt$, где $g(t)$ – нормализованная временная функции распределения интенсивности, а $N_{O_2}^0 = 2,5 * 10^{19} \text{ см}^{-3}$ – концентрация молекулярного кислорода. Значение сечения ионизации исходя из этого получилось равным $\sigma_{O_2}^{(2)} = (3,2 \pm 1,3) \cdot 10^{18} \text{ см}^4/\text{с} * \text{Вт}^2$.

4. Заключение

Были проведены работы по созданию узкополосного лазерного источника на длине волны 222 нм на базе эксимерного KrCl лазера. 1. Был запущен и оптимизирован для работы с KrCl эксимерный лазер Lambda Physik LPX210i, который на оптимальной смеси 1% (HCl+H₂)/10% Kr /89.9% Ne генерировал импульсы длительностью 15 нс с энергией 200 мДж на длине волны 222 нм. Максимальный полученный КПД KrCl лазера в ходе проведенных экспериментов составил 0,5 %. Были проведены исследования зависимости энергии генерации от абсолютного давления рабочей смеси и зарядного напряжения накопительных емкостей лазера.

2. Был модернизирован LC-инвертор накачки лазера ЦФП ИОФАН Модель 1701, этот лазер на KrCl смеси 1% (HCl+H₂)/10% Kr /89.9% Ne с плоским резонатором генерировал импульсы с энергией до 40 мДж и длительностью импульса 10 нс. Попытка оснащения лазера 1701 спектрально селективным резонатором не увенчалась успехом из-за короткой длительности генерации в KrCl, не позволяющей сделать многопроходный резонатор.

3. С целью получения узкополосного затравочного излучения на длине волны 222 нм был запущен импульсный лазер на красителе Coumarin 120 с накачкой эксимерными XeCl или XeF лазерами. Было получено видимое излучение с длиной волны 444 нм с энергией ~1 мДж и длительностью импульса 25 нс с шириной спектра 0,2 см⁻¹, которое удваивалось по частоте в кристалле ВВО, давая ~0.1 мДж на длине волны 222 нм.

4. Было проведено исследование многофотонной ионизации воздуха излучением на длине волны 222 нм. Обнаружено, что основным процессом фотоионизации атмосферного воздуха является резонансная двухфотонная ионизация (REMPI) кислорода, было измерено сечение этого процесса, которое составило $\sigma_{O_2}^{(2)} = (3,2 \pm 1,3) \cdot 10^{18} \text{ см}^4/\text{с} * \text{Вт}^2$.

В дальнейшем созданные лазерные системы планируется использовать в схеме задающий генератор-усилитель для получения мощных узкополосных

импульсов на длине волны 222 нм для последующей ВКР перестройки и накачки атмосферного воздуха.

Список литературы

- [1] A. Dogariu, J.B. Michael, M.O. Scully, R.B. Miles, "High gain backward lasing in air", 2011
- [2] A.Laurain, M. Scheller, P. Polynkin "Low-Threshold Bidirectional Air Lasing", 2014
- [3] Басов Н.Г., Данилычев В.А., Попов Ю.М., Ходкевич Д.Д., "Квантовый генератор в вакуумной области спектра при возбуждении жидкого ксенона электронным пучком", 1970
- [4] А. М. Ражев, А. А. Жупиков, Е. С. Каргапольцев, "Эксимерный KrCl-лазер ($\lambda = 223$ нм) на смеси He-Kr-HCl", 2004
- [5] A. Dogariu and R. Miles, "High-Gain Air Lasing by Multiphoton Pumping of Atomic Species"
- [6] Mohammad A. Omary, Howard H. Patterson, "Encyclopedia of Spectroscopy and Spectrometry (Third Edition)", 2017
- [7] Н.В. Лисицына, "Учебно-методическое пособие Эксимерные лазеры", 2006
- [8] Ch. K. Rhodes, "Excimer Lasers", 1980
- [9] Andrew J. Traverso, Rodrigo Sanchez-Gonzalez and others, "Coherence brightened laser source for atmospheric remote sensing", 2012
- [10] Alexandre Laurain, Maik Scheller, and Pavel Polynkin, "Low-Threshold Bidirectional Air Lasing", 2014
- [11] Alisauskas S., Baltuska A., Boyd R., Polynkin P., "Backward air lasing with femtosecond pumping", 2015
- [12] E. Armandillo, A. Luches, V. Nassisi, and Maria R. Perrone, "Gain measurements in the KrCl excimer laser", 1985
- [13] V. F. Tarasenko, S. V. Mel'chenko A. N. Panchenko and G.S. Evtushenko, "Control of the XeCl and KrCl lasers emissions parameters and frequency conversion of UV radiation in the hydrogen and lead vapor cells using stimulated Raman effect", 1992
- [14] А.З. Грасюк, И. Г. Зубарев, Н. В. Суязов, "Влияние ширины спектральной линии возбуждающего излучения на усиление при вынужденном рассеянии", 1972
- [15] В. Э. Пеэт, Е. В. Сливинский, А. Б. Трещалов, "Диагностика электроразрядного KrCl-лазера", 1990
- [16] Д.В. Петров, И.И. Матросов, Д.О. Сединкин, А.Р. Зарипов, "Спектры комбинационного рассеяния азота, диоксида углерода и водорода в окружении метана", 2018
- [17] Guochao Qian, Qingjun Peng and other, "Experimental Study on monitoring of SF₆ degradation by Raman Spectroscopy", 2020
- [18] Yunsheng Huo, Kouki Shimizu, and Takashi Yagi, "High-efficiency second-Stokes-order Raman conversion of KrF laser radiation in hydrogen", 1992
- [19] С. П. Антохов, Т. Я. Марусий, М. С. Соскин, "Перестраиваемые лазеры", Глава 4
- [20] Н.А. Рубинов, "Оптические квантовые генераторы на растворах органических красителей", 1968
- [21] Gerd Marowsky, "Principles of dye laser operation and dye laser tuning methods", 1976
- [22] Г. Л. Киселев, "Квантовая и оптическая электроника. Учебное пособие для вузов", 5-е издание, Глава 6

[23] B. Ruckle, P. Lokai and other, “Tuning ranges of an injection-locked excimer laser”, 1987

[24] А. М. Ражев, А. А. Жупиков, Исследование влияния удельной мощности накачки на энергию излучения и КПД эксимерного газоразрядного КгСl-лазера (223 нм), 2008

[25] А. В. Шутов, Диссертация на соискание ученой степени кандидата физико-математических наук “Нелинейные процессы при усилении мощных субпикосекундных УФ лазерных импульсов в КгF лазерной системе и их распространении в атмосфере”, 2019