

ОСОБЕННОСТИ РАБОТЫ KrCl ЛАЗЕРА В ЗАВИСИМОСТИ ОТ ТЕМПЕРАТУРЫ АКТИВНОЙ СРЕДЫ С HCl И VCl₃ В КАЧЕСТВЕ ДОНОРА ГАЛОГЕНОВ

М. Н. Агапов¹, П. В. Велиев¹, А. Д. Воронцова¹, В. Д. Зворыкин¹,
Е. В. Ионушайте^{1,2}, Л. И. Кармазин^{1,3}, Н. Н. Устиновский¹,
С. Н. Хусаинов¹, А. В. Шутов¹

Рассмотрено влияние температуры активной среды на работу эксимерного KrCl лазера. Обнаружено, что при использовании HCl в качестве донора галогена нагрев активной среды в диапазоне от 10 до 30 °C приводит к существенному падению выходной энергии излучения и КПД лазера. В качестве решения проблемы предложено использовать альтернативный донор галогена VCl₃. Найдена оптимальная концентрация VCl₃ в рабочей смеси KrCl лазера, которая составила ~0.05%.

Ключевые слова: KrCl, эксимерные лазеры, температура активной среды.

На сегодняшний день во множестве лабораторий по всему миру ведутся работы по получению инверсной населенности в атмосферном воздухе при оптической накачке лазерным излучением [1]. Прикладная значимость этих работ определяется, в первую очередь, перспективой использования когерентного вынужденного излучения, направленного обратно к источнику накачки, для задач зондирования атмосферы [2]. Наиболее перспективные результаты в данном направлении были получены с использованием дискретных линий глубокого ультрафиолета (207, 211, 226 нм) [3–6]. Однако дальнейшее развитие этих работ естественным образом ограничивалось имеющимися источниками УФ-излучения на этих резонансных длинах волн. Даже используя мощные ИК источники, такие как наносекундные Nd лазеры с энергией 2–3 Дж, после преобразования в длину волны 226 нм предельные достижимые параметры УФ импульсов ограничиваются энергией импульса ~10 мДж при мощности ~1 МВт [4]. В настоящий момент в

¹ ФИАН, 119991 Россия, Москва, Ленинский пр-т, 53; e-mail: ash@lebedev.ru.

² МГУ им. М. В. Ломоносова, 119991 Россия, Москва, Ленинские горы, 1.

³ МГТУ им. Н. Э. Баумана, 105005 Россия, Москва, 2-я Бауманская ул., д. 5, стр. 1.

нашей группе в ФИАН ведутся работы по созданию лазерного источника для накачки лазерных переходов в атмосферном воздухе на базе эксимерного KrCl лазера. Длина волны излучения этого лазера 222 нм, как ожидается, может быть эффективно подстроена в нужную резонансную длину волны накачки атомарного кислорода 226 нм за счет вращательной ВКР перестройки в газах. KrCl лазеры впервые появились во второй половине 1970-х годов наряду с другими эксимерными лазерами на галогенидах инертных газов [7, 8]. В KrCl активной среде, в отличие от других эксимерных лазеров, наблюдается относительно низкий коэффициент усиления и, как правило, низкие выходные характеристики. А поскольку KrCl лазеры по длине волны излучения конкурировали с гораздо более эффективными ArF (193 нм) и KrF (248 нм) лазерами, то их относительно низкая эффективность привела к тому, что через полтора десятилетия эти лазеры исчезли из каталогов производителей коммерческих эксимерных лазерных систем. Тем не менее, определенный интерес к ним сохранялся в научном сообществе, исследования KrCl лазеров проводились в России, в частности в ИЛФ СО РАН группой А. М. Ражева [9, 10] и группой А. Н. Панченко в ИСЭ СО РАН [11, 12], в Тарту [13] и за рубежом [14]. Обобщая результаты этих работ, можно отметить, что при создании лазеров с мощной до 6 МВт/см³ накачкой, достигаются высокие до 0.7 Дж выходные энергии при длительности импульса 15 нс и КПД ~1%, что сопоставимо с параметрами генерации других эксимерных смесей [9].

Для промышленных эксимерных лазеров с электроразрядной накачкой рабочая температура активной среды (T_{AC}) обычно лежит в пределах 30–40 °С, что является результатом нагрева газа разрядом и охлаждения через теплообменники воздухом или водой. Некоторые смеси, например, в ArF, XeF или F₂ лазерах рекомендуется нагревать до этих температур из-за лучшей производительности, в случае KrF лазера, выходные параметры в значительной степени не чувствительны к T_{AC} , в то время как для XeCl лазера предпочтительно охлаждение [15–17]. Поскольку KrCl лазеры получили относительно небольшое научное внимание, по сравнению с другими эксимерными лазерами, в литературе не встречается информация относительно характеристик работы KrCl лазеров в зависимости от T_{AC} . В нашей работе исследуются характеристики генерации коммерческого эксимерного KrCl лазера в зависимости от температуры активной среды с донорами галогенов HCl и BCl₃.

Эксперименты проводились на эксимерном лазере Lambda Physik LPX210i, работающем на оптимальной [9] смеси 0.02%/0.1%/2%/10% H₂/HCl/He/Kr с Ne в качестве буфера, при общем давлении 3.3 атм. В некоторых опытах по поиску альтернативно-

го донора галогена премикс $\text{H}_2/\text{HCl}/\text{He}$ заменяли на VCl_3/He . Лазерная кювета была закрыта скошенными окнами из MgF_2 , лазер использовался с двумя типами внешнего резонатора: плоским, состоящим из высокоотражающего зеркала и параллельной пластины, а также с внешним неустойчивым резонатором типа Кассегрена длиной 1.5 м с коэффициентом увеличения $M = 11$. Лазер был дооборудован замкнутой системой охлаждения, которая включала в себя циркуляционный насос, прокачивающий воду со скоростью ~ 2 л/мин через внутренние ребренные теплообменники лазера и холодильник Димрота, который охлаждался гликолевым криостатом LOIP FT311-80. Эта система позволяла охлаждать воду, циркулирующую в системе охлаждения лазера, до температуры $T_w \sim 1$ °С. Температура активной среды лазера контролировалась тремя термопарами, закрепленными на алюминиевом корпусе лазерной кюветы, в которой находился рабочий газ. Мы оцениваем точность измерения $T_{\text{AC}} \pm 2$ °С. Лазер работал в импульсно-периодическом режиме с длительностью импульса 15 нс и частотой повторения 1 Гц. Выходная энергия импульса лазера измерялась калориметром Ophir NOVA-II с пирозлектрической головкой PE50-C. Каждая точка на графике является усреднением по ~ 10 выстрелам.

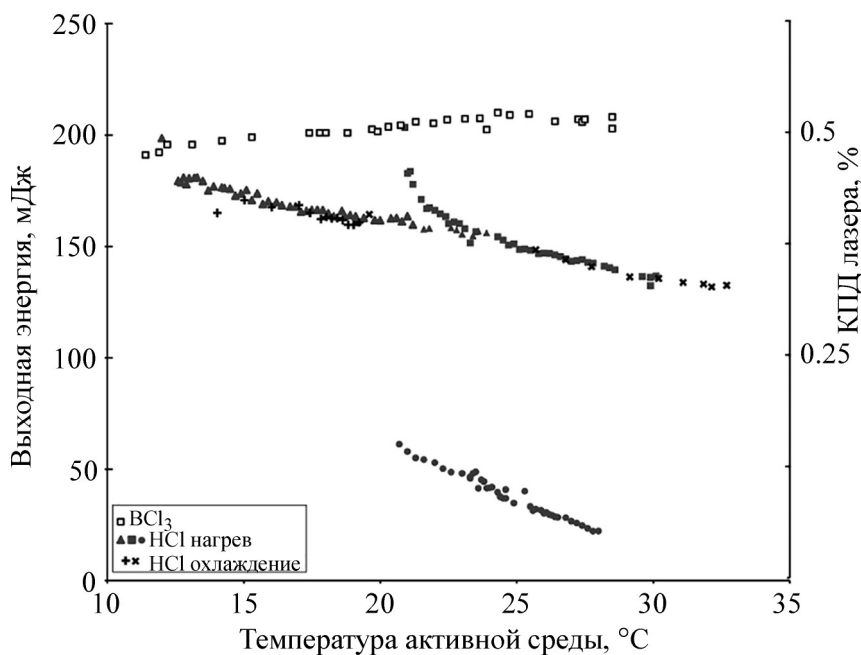
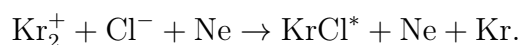


Рис. 1: Зависимость энергии генерации и КПД KrCl лазера от температуры активной среды для донора галогена HCl и VCl_3 , разные точки соответствуют разным сериям измерений, нижняя кривая получена на “старой” смеси.

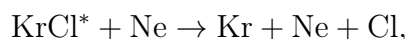
Для свежей смеси с донором галогена HCl изначально наблюдалась быстрая деградация выходной энергии с ~ 200 мДж, которая стабилизировалась на уровне ~ 175 мДж, при дальнейшем нагреве лазера от 12 до 30 °C выходная энергия снижалась до ~ 125 мДж. Схожее поведение наблюдалось в работе [18]. Причем эффект был обратимым, охлаждение горячей смеси приводило к росту выходной энергии. На поработавшей несколько недель смеси картина воспроизводилась, при этом эффект был более выраженным. В относительно небольшом температурном диапазоне $\Delta T \sim 10$ °C наблюдалось более чем двукратное снижение выходной энергии (рис. 1, нижняя кривая).

Подобное падение эффективности лазера с нагревом (и ее восстановление при охлаждении) могло бы объясняться, например, тем, что в активной среде имеется поглощающая лазерное излучение примесь, чье парциальное давление меняется с температурой. Чтобы проверить эту гипотезу, стационарное поглощение не накачиваемой активной среды лазера LPX-200 со снятыми зеркалами измерялось при зондировании излучением второго эксимерного KrCl лазера (ЦФП ИОФАН, модель 1701), и в диапазоне температур от 15 до 30 °C мы не наблюдали никакого влияния T_{AC} на энергию однопроходного зондирующего импульса.

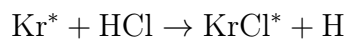
Рассмотрим имеющиеся литературные данные о влиянии газовой температуры на кинетику электроразрядного KrCl лазера. Основным каналом образования эксимерных молекул KrCl* является ион-ионная рекомбинация [13]



Известно, что если в этих реакциях в качестве рабочего инертного газа участвует Хе, константа скорости реакции падает с ростом температуры, что сопровождается уменьшением выходной энергии лазера [16]. Логично ожидать, что при замене Хе на другой тяжелый инертный газ Kr, характер зависимостей сохранится. Далее, молекула KrCl* образуется в высоковозбужденном колебательном состоянии с энергией, близкой к диссоционному пределу, и только после колебательной VT релаксации [18] заселяется верхний лазерный уровень. В процессе VT релаксации молекула KrCl* подвержена конкурирующему столкновительному тушению в реакциях типа



которое уменьшает КПД лазера. Известно, что скорость VT релаксации падает с ростом температуры [19] и, соответственно, эффект тушащих столкновений возрастает. Наконец, вклад гарпунной реакции



хоть и считается малым [13], однако тоже падает с температурой, что наблюдается при работе эксимерных KrCl ламп [20]. Рассмотренные выше факторы, по-видимому, являются причиной негативного эффекта повышения температуры активной среды на работу KrCl лазера. Поскольку в KrCl лазере коэффициент усиления слабого сигнала относительно невелик, даже небольшое его уменьшение может приводить к заметному падению выходной энергии, и наоборот (увеличение к росту). Это, в частности, подтверждается тем, что для отработанной смеси, с меньшей разницей между коэффициентом усиления и потерями, температурная зависимость более выраженная.

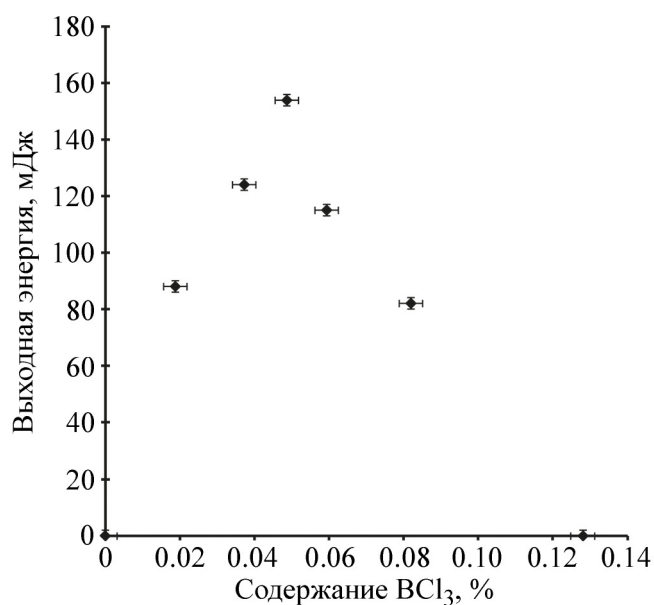


Рис. 2: Зависимость выходной энергии KrCl лазера от концентрации BCl₃ для смеси, содержащей 200 мбар Kr и 3000 мбар Ne.

Чтобы обеспечить устойчивую работу KrCl лазера в условиях возможного нагрева активной среды (напр., при длительной работе в импульсно-периодическом режиме), мы рассмотрели варианты работы лазера с другими донорами хлора. Известна попытка работать с Cl₂ в качестве донора галогена в KrCl лазере, она была относительно безуспешной [21]. Другим возможным донором Cl в эксимерных лазерах является BCl₃

[22]. Был проведен ряд экспериментов, где определялась оптимальная концентрация BCl_3 в рабочей смеси KCl лазера. Особенностью BCl_3 является высокая температура кипения $T_{\text{кип}} = 12.6 \text{ }^\circ\text{C}$, в связи с чем для этой смеси попытка изменения концентрации путем разбавления (откачки и донапуска части смеси) приводит к исчезновению генерации, ввиду конденсации BCl_3 при падении давления, а с ним и температуры. Согласно нашим измерениям оптимальная концентрация BCl_3 в рабочей смеси примерно вдвое ниже, чем оптимальная концентрация HCl , и составляет $\sim 0.05 \pm 0.003$ об.% (рис. 2). Выходная энергия лазера, работающего на BCl_3 , немного превышает выходную энергии лазера с донором галогена HCl , причем смесь с BCl_3 оказалась не чувствительной к температуре (рис. 1). По мере нагрева лазерной кюветы скорее наблюдалось небольшое увеличение выходных параметров лазера, связанное, по-видимому, с частичным испарением BCl_3 , сконденсировавшегося на внутренних теплообменниках лазерной камеры, и этот фактор перевешивает остальные. Отметим, что после длительной работы KCl лазера (многократного напуска) на треххлористом боре возврат к чувствительной к температуре работе на HCl требует многократной пассивации кюветы HCl .

Заключение. Было обнаружено, что для типовых коммерческих лазерных систем, где температура активной среды может достигать $\sim 30\text{--}40 \text{ }^\circ\text{C}$, несмотря на штатное водяное охлаждение, работа KCl лазера с HCl в качестве донора галогена является неэффективной. При нагреве активной среды такого лазера с 10 до $30 \text{ }^\circ\text{C}$ выходная энергия и КПД лазера падают с 200 до 130 мДж и с 0.5 до 0.35%, соответственно. Эффект является обратимым, охлаждение нагретой активной среды приводит к частичному восстановлению (увеличению) выходных характеристик. В качестве решения данной проблемы предложено использовать в качестве донора галогена BCl_3 , позволяющий получать выходные характеристики лазера, не уступающие выходным характеристикам лазера с донором HCl , но при этом не чувствительные к рабочей температуре. Найдена оптимальная концентрация BCl_3 в смеси KCl лазера, которая составила 0.05 ± 0.003 об. %.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФ, грант № 21-72-00162.

В заключение авторы благодарят А. М. Сороку и И. Г. Рудого за интерес и внимание к работе, а также А. Е. Матусевича и В. Ю. Ковалева за техническую помощь.

Л И Т Е Р А Т У Р А

- [1] *Air Lasing*, ed. P. Polynkin, Y. Cheng (Springer, 2018).

- [2] P. N. Malevich, D. Kartashov, Z. Pu, et al., *Optics Express* **20**(17), 18784 (2012). DOI: 10.1364/OE.20.018784.
- [3] A. Dogariu, J. B. Michael, M. O. Scully, R. B. Miles, *Science* **331**(6016), 442 (2011). DOI: 10.1126/science.1199492.
- [4] A. Laurain, M. Scheller, P. Polynkin, *Physical Review Letters* **113**(25), 253901 (2014). DOI: 10.1103/PhysRevLett.113.253901.
- [5] A. J. Traverso, R. Sanchez-Gonzalez, L. Yuan, et al., *Proceedings of the National Academy of Sciences* **109**(38), 15185 (2012). DOI: 10.1073/pnas.1211481109.
- [6] S. Alisauskas, A. Baltuska, R. Boyd, P. Polynkin, “Backward air lasing with femtosecond pumping,” in 2015 European Conference on Lasers and Electro-Optics – European Quantum Electronics Conference (Optica Publishing Group, 2015), paper PD_A_4. ISBN: 978-1-4673-7475-0.
- [7] J. R. Murray, H. T. Powell, *Applied Physics Letters* **29**(4), 252 (1976). DOI: 10.1063/1.89034.
- [8] V. N. Ishchenko, V. N. Lisitsyn, A. M. Razhev, *Optics Communications* **21**(1), 30 (1977). DOI: 10.1016/0030-4018(77)90070-0.
- [9] А. М. Ражев, А. А. Жупиков, *Квантовая электроника* **38**(11), 1005 (2008). DOI: 10.1070/QE2008v038n11ABEH013762.
- [10] А. М. Ражев, А. А. Жупиков, Е. С. Каргапольцев, *Квантовая электроника* **34**(2), 95 (2004). DOI: 10.1070/QE2004v034n02ABEH002589.
- [11] А. Н. Панченко, В. Ф. Тарасенко, Е. В. Букатый, *Квантовая электроника* **16**(12), 2409 (1989). DOI: 10.1070/QE1989v019n12ABEH009815.
- [12] А. Н. Панченко, В. Ф. Тарасенко, *Квантовая электроника* **28**(2), 136 (1999). DOI: 10.1070/QE1999v029n08ABEH001554.
- [13] В. Э. Пезт, Е. В. Сливинский, А. Б. Трещалов, *Квантовая электроника* **17**(4), 438 (1990). DOI: 10.1070/QE1990v020n04ABEH005688.
- [14] E. Armandillo, A. Luches, V. Nassisi, M. R. Perrone, *Applied Physics Letters* **42**(10), 860 (1983). DOI: 10.1063/1.93792.
- [15] B. Fontaine, B. Forestier, *Appl. Phys. Lett.* **36**(3), 185 (1980). <https://doi.org/10.1063/1.91440>.
- [16] Go Imada, Katsumi Masugata, Kiyoshi Yatsui, Wataru Masuda, *Appl. Phys. Lett.* **63**(10), 1313 (1993). <https://doi.org/10.1063/1.109715>.
- [17] J. C. Hsia, J. A. Mangano, J. H. Jacob, M. Rokni, *Appl. Phys. Lett.* **34**, 208 (1979). <https://doi.org/10.1063/1.90732>.

- [18] M. Decker, V. Sick, *Applied Optics* **35**(3), 482 (1996). DOI: 10.1364/AO.35.000482.
- [19] В. В. Дацюк, И. А. Измайлов, В. А. Кочелап, *УФН* **168**(4), 439 (1998). DOI: <https://doi.org/10.3367/UFN.0168.199804c.0439>.
- [20] X. Zhuang, Q. Han, H. Zhang, et al., *J. Phys. D: Appl. Phys.* **43**, 205202 (2010). DOI: 10.1088/0022-3727/43/20/205202.
- [21] M. Shimauchi, T. Miura, K. Oikawa, *Jpn. J. Appl. Phys.* **25**, 1556 (1986). DOI: 10.1143/JJAP.25.1556.
- [22] V. E. Peet, A. B. Treshchalov, E. V. Slivinskij, *Applied Physics B* **52**(3), 234 (1991). DOI: 10.1007/bf00750957.

Поступила в редакцию 24 апреля 2023 г.

После доработки 7 июня 2023 г.

Принята к публикации 8 июня 2023 г.