

# Фотохимические лазеры на электронных переходах молекул

Л.Д.Михеев

*Дан краткий обзор основных этапов развития фотохимического метода возбуждения газовых лазеров ближнего ИК, видимого и УФ диапазонов спектра на основании работ, которые проводились в Отделении КРФ ФИАН и в кооперации с другими организациями в рамках программы по созданию мощных лазеров со взрывной оптической накачкой, выполнявшейся под научным руководством академика Н.Г.Басова.*

**Ключевые слова:** фотохимический лазер, источник накачки, открытый разряд, волна фотодиссоциации, фотохимические процессы.

## 1. Введение

Работы по развитию в ФИАНе фотохимического метода возбуждения активных лазерных сред на электронных переходах были инициированы в 1965 г. отчетом П.А.Бажулина, Н.Г.Басова, О.Н.Крохина, А.Н.Ораевского, И.И.Собельмана [1], в котором впервые были сформулированы основные принципы создания мощных фотодиссоционных лазеров на метастабильных атомах с накачкой излучением таких нетрадиционных источников, как высокотемпературный разряд и сильная ударная волна (подробнее о проекте мощного фотодиссоционного лазера со взрывной накачкой см. [2]). В основе предложений лежали метод фотодиссоциации молекул для получения инверсной населенности атомарных состояний [3] и результаты работ [4, 5], в которых впервые был реализован этот способ накачки и получена лазерная генерация в системе уровней  $^2P_{1/2} - ^2P_{3/2}$  тонкой структуры атома иода ( $\lambda = 1.315$  мкм).

Физические основы и конструктивные особенности иодного лазера, начало систематических исследований которого было положено работами, выполненными в ФИАНе по инициативе Н.Г.Басова, достаточно подробно рассмотрены в целом ряде обзоров и монографий (см., например, [6–8]). Бурное развитие иодного фотодиссоционного лазера послужило толчком к разворачиванию работ, направленных на более глубокое исследование возможностей фотодиссоционного метода накачки и поиск новых активных сред для мощных лазеров с оптическим возбуждением. Основной мотивацией их проведения было стремление сделать длину волны излучения короче, чем у иодного лазера, с тем, чтобы повысить эффективность взаимодействия лазерного излучения с веществом. Необходимо отметить, что аналогичные работы по поиску новых активных сред для фотодиссоционного лазера проводились и в других лабораториях

мира. Однако там в качестве источников накачки использовались импульсные лампы, лазеры и спонтанное излучение эксимеров благородных газов, возбуждаемых электронным пучком, которые по энергетическим параметрам значительно уступали высокотемпературным разрядам и сильной ударной волне, предложенным в уже упоминавшемся отчете ФИАНа [1]. В общей сложности при оптическом возбуждении, включая фотодиссоциацию и другие обсуждаемые в настоящем обзоре механизмы накачки, лазерный эффект наблюдался на атомах 24 элементов Периодической системы и 18 молекулярных переходах в диапазоне 11.35 мкм–223 нм.

Впервые высокотемпературный разряд и сильная ударная волна были использованы для возбуждения фотодиссоционного лазера на атомарном иоде [6, 7, 9]. Это позволило продемонстрировать такие преимущества фотохимического метода возбуждения, как возможность увеличения лазерной энергии пропорционально объему активной среды и энергии накачки, а также техническая простота и низкая стоимость получения лазерного излучения высокой энергии. Благодаря своей универсальности и высокой энергии излучения в УФ и ВУФ областях спектра, где расположены наиболее сильные полосы поглощения подавляющего большинства молекул, эти источники накачки заметно расширили экспериментальные возможности фотохимического метода и позволили получить целый ряд уникальных результатов. Кроме того, их применение привело к развитию наряду с фотодиссоциацией методов прямого оптического возбуждения молекулярных газов и возбуждения во вторичных фотохимических реакциях. При этом была экспериментально продемонстрирована возможность относительно легко управлять довольно сложными фотохимическими процессами, направляя их по нужному каналу путем изменения состава и давления рабочей смеси, а также длины волны возбуждения. Несмотря на достаточно длинные цепи химических превращений, оказалась возможной высокая селективность получения лазерно-активных состояний, характеризующаяся квантовыми выходами их образования, близкими к 100 %.

Иодный фотодиссоционный лазер – пока единственный лазер на атомарном переходе, возбуждаемый излу-

Физический институт им. П.Н.Лебедева РАН, Россия, 119991 Москва, Ленинский просп., 53; тел./факс: (095) 135 87 03, e-mail: mikheev@sci.lebedev.ru

Табл.1.

Молекула	$\lambda_g$ (нм)	$\lambda_p$ (нм)	Литература
CN	1150	180	[10]
S <sub>2</sub>	1100	220	[11]
XeO	538	140	[12]
Xe <sub>2</sub> Cl	520	137	[13]
HgCl	558	190	[14]
HgBr	504	200	[15]
HgI	443	225	[16]
IF	491	130	[17]
XeF (C – A)	485	160	[18]
Kr <sub>2</sub> F	450	160	[19]
XeF (B – X)	351	160	[20]
I <sub>2</sub>	342	190	[21, 22]
KrCl	223	137	[23]

чением открытого разряда и сильной ударной волны. В дальнейшем по причинам, которые обсуждаются в настоящем обзоре, фотохимический метод развивался по пути использования молекулярных переходов в качестве активных сред лазеров с рассматриваемыми источниками накачки. В табл.1 приведены молекулы, на которых получена лазерная генерация при накачке излучением открытого разряда и сильной ударной волны, длины волн генерации  $\lambda_g$ , области накачки  $\lambda_p$  и ссылки на приоритетные работы. Пока еще не все из реализованных механизмов лазерной генерации получили должное развитие, однако практически все они носят принципиальный характер, что указывает на перспективность тех или иных направлений поиска новых активных сред.

Остановимся далее на ключевых моментах развития в ФИАНе фотохимического метода возбуждения. Часть результатов получена в кооперации с ВНИИЭФ (S<sub>2</sub>-лазер), НПО «Астрофизика» (XeF-лазер с накачкой излучением ударной волны и поверхностного разряда), ГИПХ (XeF-лазер с накачкой излучением ударной волны и CN-лазер), МГТУ им. Н.Э.Баумана (лазеры на галогенидах ртути с накачкой излучением поверхностного разряда) и С.-ПГУ (спектрально-кинетические исследования). Более подробное описание рассмотренных ниже систем можно найти в [24] и в цитируемых в настоящем обзоре оригинальных работах.

## 2. Источники накачки

Основные результаты были получены при накачке открытым излучающим разрядом, представляющим собой импульсный протяженный разряд, поджигаемый непосредственно в рабочей смеси лазера и занимающий лишь небольшую часть объема лазерной кюветы. Излучение плазмы разряда возбуждает газообразную рабочую смесь, находящуюся в свободной от разряда части объема. К наиболее распространенным способам иницирования разряда относятся электрический взрыв тонких металлических проволочек, а также разряды по поверхности диэлектриков. При взрыве проволочки образуется столб плазмы правильной цилиндрической формы, который расширяется с радиальной скоростью около 1 км/с. Отсутствие оболочки, разделяющей плазму разряда и активную среду, дает возможность использовать излучение в любом спектральном интервале, вклю-

чая ВУФ область спектра. При характерных для такого разряда яркостных температурах 30–35 кК, обычно реализуемых при энергии питающей разряд конденсаторной батареи свыше 1 кДж, его излучение в пределах актуальных полос поглощения рабочего вещества имеет интенсивность до 1 МВт/см<sup>2</sup>. Высокая удельная плотность мощности возбуждения, составляющая обычно сотни кВт/см<sup>3</sup>, приводит к тому, что за время порядка 10<sup>-5</sup> с в 1 см<sup>3</sup> может образовываться до 10<sup>18</sup> свободных атомов и радикалов.

Приоритет в исследовании и применении взрывающихся проволочек как источника накачки принадлежит работам, выполненным в ФИАНе. Основное внимание при их исследовании уделялось изучению энергетического баланса в разряде, его излучательным и газодинамическим характеристикам [7, 25, 26]. Было обнаружено, что получение УФ и ВУФ излучения при электровзрыве проволочек имеет свои особенности, связанные с выбором материала и толщины проволочки [24, 27–30]. Оптимальным оказалось использование проволочек толщиной 10–50 мкм из таких тугоплавких материалов, как молибден и вольфрам. При их электрическом взрыве излучательные и газодинамические свойства разряда при напряжении 50 кВ слабо зависят от длины разрядного промежутка (по крайней мере, в интервале 10–100 см), а также от состава и давления рабочей смеси. Это позволяет, не меняя электрической схемы, в широких пределах варьировать условия проведения эксперимента. Последнее обстоятельство было решающим в выборе взрывающейся проволочки в качестве источника накачки при поиске и исследовании новых активных сред для фотохимических лазеров.

В то же время для создания практически полезных лазеров с более высокими эксплуатационными характеристиками был разработан целый ряд других способов формирования протяженных источников оптической накачки. Все они основаны на поверхностном разряде по диэлектрику, что позволяет реализовать импульсно-периодический режим накачки, и различаются лишь устройствами для пространственной стабилизации разряда. К ним относятся секционированный [31], линейно-стабилизированный [32, 33] и многоканальный поверхностные разряды [34]. При равных удельных энерговкладах, обеспечивающих высокую оптическую плотность плазмы разряда, поверхностный разряд близок по своим излучательным характеристикам к взрывающейся проволочке. При малых энерговкладах, когда плазма разряда оптически прозрачна, спектр ее излучения в значительной степени зависит от материала подложки, что позволяет управлять спектральным составом и соответственно энергетическим выходом излучения в актуальной спектральной области.

В работах [35, 36] предложен источник накачки на основе открытого разряда, формируемого вдоль поверхности ферритового стержня. Принцип его действия основан на омическом нагреве материала проводящей дорожки, предварительно выжигаемой на поверхности ферритового стержня. Механизм формирования разряда близок к механизму взрыва проволочки, но в то же время позволяет реализовать многократный режим действия. Данный источник использовался для возбуждения I<sub>2</sub>- и XeF-лазеров [35, 37–39].

Практически наиболее важной характеристикой электроразрядного источника оптической накачки является

эффективность преобразования электрической мощности, поступающей в разряд, в мощность его излучения в пределах актуальной полосы поглощения рабочего вещества. Обычно эта эффективность составляет 5%–10% и зависит главным образом от ширины спектра поглощения. В качестве примера можно привести результаты измерений эффективности источника накачки фотодиссоционного XeF-лазера, возбуждаемого в ВУФ области спектра ( $\lambda_p = 160$  нм,  $\Delta\lambda = 20$  нм), составившей 8.5% [40]. Примерно такое же значение получено для накачки иодного фотодиссоционного лазера в УФ области ( $\lambda_p = 270$  нм,  $\Delta\lambda = 40$  нм) [7].

Особое место в ряду источников оптической накачки фотохимических лазеров занимает сильная ударная волна, возбуждаемая взрывом взрывчатого вещества в исходной рабочей смеси [2, 9, 41]. При использовании в качестве буферного газа Kr, Xe или их смесей при давлении 1 атм ударная волна, движущаяся со скоростью 5–8 км/с, излучает как черное тело с яркостной температурой 25–30 кК.

### 3. Механизмы оптического возбуждения

При фотохимическом возбуждении инверсная населенность может возникать в результате первичных или вторичных фотопроцессов. К первичным процессам относятся фотодиссоциация молекул при их оптическом переходе в непрерывный спектр состояний и оптическое возбуждение в связанные состояния. В первом случае инверсно заселяются состояния продуктов диссоциации, во втором – состояния исходной молекулы.

Ко вторичным процессам относятся реакции продуктов первичных фотопроцессов между собой или с заранее добавленным в рабочую смесь реагентом. Использование вторичных процессов позволяет в ряде случаев создать более благоприятные условия для возбуждения лазерной генерации или сдвинуть излучение в другой спектральный диапазон. При этом, вообще говоря, отпадает необходимость создания инверсии в первичных фотопроцессах.

Среди молекулярных переходов, на которых получается лазерная генерация при фотохимической накачке, наиболее многочисленными являются ионно-ковалентные переходы (исключение составляют лишь молекулы CN, S<sub>2</sub> и XeO). Это обусловлено несколькими причинами.

Первая причина заключается в том, что возбужденные ионные состояния легко получаются в результате реакций с переносом заряда, обладающих самыми большими сечениями среди процессов с участием нейтральных реагентов. При этом следует отметить, что указанный класс реакций чрезвычайно широк и представляет большие возможности в выборе конкретных механизмов возбуждения ионных состояний молекул. Наиболее известными реакциями данного типа являются гарпунные реакции, к которым в частности относятся реакции возбужденных атомов благородных газов с галогеносодержащими молекулами, лежащие в основе кинетики возбуждения эксимерных лазеров. Эти реакции характеризуются переносом заряда от возбужденного атома благородного газа к галогеносодержащим молекулам, таким как F<sub>2</sub>, Cl<sub>2</sub> и др., обладающим большим сродством к электрону. Перенос заряда происходит в области квазипересечения ковалентного и ионного термов комплексов, образующегося при сближении реагентов (рис.1). По-

скольку эта область, благодаря дальнедействующему кулоновскому взаимодействию, лежит, как правило, на больших межъядерных расстояниях (порядка 10 Å), такие реакции характеризуются большими сечениями – порядка нескольких сотен Å<sup>2</sup>. Оценить межъядерное расстояние  $r_0$ , при котором происходит перенос заряда, можно из очевидного соотношения (рис.1)  $r_0 \approx (I - U_e - E^*)^{-1}$  а.е., где  $I$  – потенциал ионизации одного из реагентов;  $U_e$  – энергия вертикального сродства к электрону другого реагента;  $E^*$  – энергия возбуждения одного из реагентов. С другой стороны, как выяснилось (см. [24, 42] и цитируемую там литературу), сечение реакций галогеносодержащих молекул с атомами благородных газов практически не зависит от того, какой из реагентов возбужден (рис.1). Это обстоятельство открыло новое направление поиска активных сред для фотохимических лазеров и, в частности, позволило использовать широкополосное молекулярное поглощение для получения эксимерных состояний, ранее возбуждавшихся лишь электронным пучком и в быстром разряде. Оценки спектрального порога возникновения таких реакций ксенона и криптона с оптически возбуждаемыми молекулами, содержащими атомы галогенов или CN, показали [42], что, как правило, они лежат в спектральной области  $\lambda > 130$  нм, легко доступной при накачке открытым разрядом и сильной ударной волной.

Вторая причина состоит в том, что в ионных состояниях молекул равновесное межъядерное расстояние, как правило, значительно больше, чем в ковалентном. Это приводит к тому, что при прямом оптическом возбуждении молекул в ионные состояния переходы осуществляются с нижних колебательных уровней основного ковалентного состояния на высоколежащие колебательные уровни верхнего состояния, где достигается высокая крутизна отталкивательной ветви потенциальной кривой. При этом, согласно принципу Франка – Кондона, в спектре поглощения наблюдается большое число колебательных полос, что обуславливает широкий спектр накачки. Кроме того, по той же причине облегчается получение инверсии на ионно-ковалентных переходах, поскольку они происходят на высокие колебательные уровни нижнего ковалентного состояния. При этом не требуется полной инверсии населенностей участвующих в генерации электронных состояний и обеспечивается быстрая очистка нижних лазерных уровней за счет колебательной релаксации. Последнее обстоятельство особенно важно в случае оптической накачки разрешенных лазерных переходов излучением тепловых источников (импульсных ламп, открытого разряда, сильной удар-

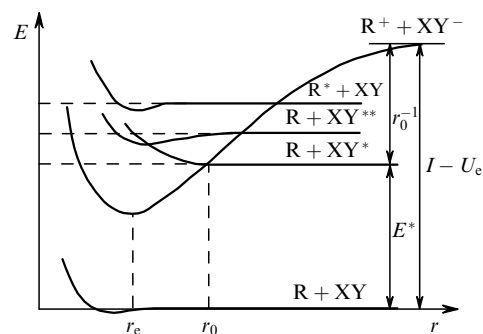


Рис.1. Потенциальные кривые, поясняющие образование возбужденных продуктов в реакциях с переносом заряда.

ной волны), т. к. для них характерна длительность импульсов накачки, лежащая в микро- или миллисекундном диапазоне.

Необходимо также отметить впервые высказанное в [43] предложение использовать для возбуждения активных сред поглощение, наведенное сталкивающимися частицами ( $A + B + h\nu$ ). В частности, в [43] указывается на возможность получения лазерной генерации на димерах благородных газов, образующихся при фотоассоциации атомов благородных газов в связанное возбужденное состояние (подробнее по поводу образования спектров поглощения при фотоассоциации см. [44–46]). Практический интерес к этому способу накачки обусловлен прежде всего тем, что он позволяет уменьшить стоксов сдвиг излучения почти до минимума (10%–20%) и получить лазерное излучение в ВУФ области спектра. Впоследствии это предложение получило дальнейшее развитие в целом ряде экспериментальных работ [47–52], что позволило сформулировать условия достижения лазерной генерации на  $\text{Xe}_2$  в области 172 нм [51]. Более того, полученные результаты свидетельствуют о том, что в широкой области возбуждения (от  $\sim 115$  до  $\sim 150$  нм) с небольшим окном прозрачности в области 135–145 нм выход  $I_u/0_u^-$ -состояний  $\text{Xe}_2$  приближается к 100%, позволяя рассчитывать на реализацию высокой эффективности оптического возбуждения лазерной генерации не только на  $\text{Xe}_2$ , но и на других эксимерах, образующихся в реакциях возбужденного ксенона с галогеносодержащими молекулами или  $\text{H}_2$  [49, 51].

#### 4. Пространственные эффекты

Высокая мощность излучения таких источников накачки, как открытый разряд и сильная ударная волна, приводит к ряду особенностей его взаимодействия с поглощающей средой, которые проявляются, в частности, в образовании волн просветления и люминесценции. Волну просветления можно наблюдать по люминесценции продуктов возбуждения из ее фронта при достаточно больших поперечных размерах кюветы  $d \gg (\sigma N_0)^{-1}$ , где  $\sigma$  и  $N_0$  – сечение поглощения и исходная концентрация поглощающего вещества. На рис.2 этот эффект продемонстрирован на примере волны фотодиссоциации  $\text{XeF}_2$  во взрывном  $\text{XeF}$ -лазере.

Впервые вопрос просветления вещества и установления волны фотодиссоциации (ВФД) рассматривался в 1965 г. в отчете [1] при обсуждении крупноапертурных фотодиссоционных лазеров большой энергии, в которых должно наблюдаться это явление. Его суть легко понять из следующих соображений. Время жизни поглощающих молекул в поле накачки  $\tau_d = (\sigma I_0)^{-1}$ , где  $I_0$  – поток в полосу поглощения вещества (фот.·см<sup>-2</sup>·с<sup>-1</sup>). Если время действия источника накачки  $T > \tau_d$ , то все вещество перед источником накачки диссоциирует и излучение накачки проникает в более глубокие слои вещества, производя там аналогичное действие. Скорость волны просветления  $D$  можно оценить, взяв отношение толщины оптического слоя  $l = (\sigma N_0)^{-1}$  к времени жизни этого слоя:  $D = l/\tau_d = I_0/N_0$ .

В простейшем случае, когда источник накачки плоский, излучение монохроматично и продукты фотодиссоциации не поглощают на длине волны накачки, в среде распространяется волна разложения, характеризующаяся стационарным профилем концентрации частиц во

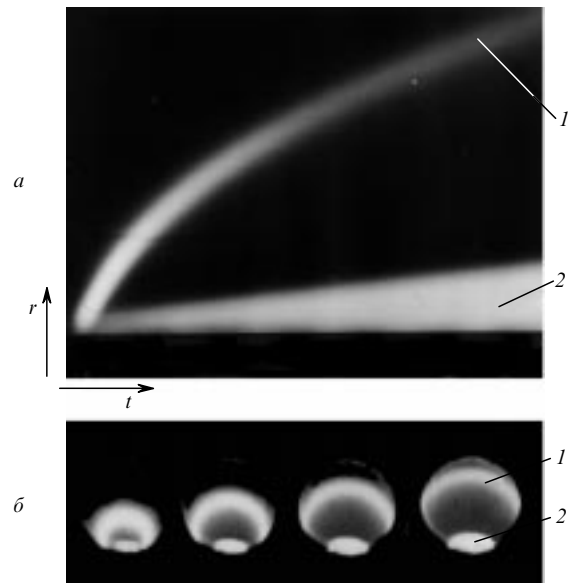


Рис.2. Фотохронограммы волны люминесценции (1) и излучения ударной волны (2) в  $\text{XeF}$ -лазере с выходной апертурой 48 см: *a* – щелевая развертка, *б* – покадровая развертка, кадры с экспозицией 0.5 мкс следуют через 2 мкс.

фронте. Этот случай подробно рассмотрен в работе [53] для потока поглощающей среды, набегающей на источник накачки со скоростью  $v$ , что, естественно, эквивалентно случаю движущегося источника в неподвижной среде. На основе уравнений переноса излучения и сохранения числа частиц в двухуровневой поглощающей среде аналитически получено выражение для профиля волны просветления, которое при  $D \gg v$  имеет довольно простой вид:

$$N/N_0 = \{1 + \exp[\sigma N_0(Dt - x)]\}^{-1},$$

где  $N$  – концентрация поглощающих частиц;  $x$  – координата вдоль направления распространения волны просветления.

Если время жизни образующихся во фронте волны возбужденных частиц мало по сравнению с характерным временем изменения скорости накачки, равным времени жизни поглощающих молекул  $(\sigma I_0)^{-1}$ , то устанавливается стационарный профиль концентрации возбужденных частиц, причем ширина функции распределения по уровню 0.5 от максимального значения составляет  $\sim 3.5 \times (\sigma N_0)^{-1}$  [24, 54]. Экспериментально наблюдается волна люминесценции возбужденных частиц, распространяющаяся со скоростью волны просветления.

Режим, в котором  $D \gg v$ , обычно называют режимом бегущей волны просветления; впервые он наблюдался в фотодиссоционном  $\text{XeF}$ -лазере. Характерное время формирования ВФД в этом лазере (также совпадающее с  $\tau_d < 10^{-6}$  с) мало по сравнению с длительностью накачки  $10^{-5} - 10^{-4}$  с. Поэтому при исходной концентрации  $\text{XeF}_2$ , удовлетворяющей условию наблюдения ВФД  $(\sigma N_0)^{-1} \ll d$ , фронт волны фотодиссоциации успевает полностью сформироваться. Скорость ВФД при этом достигает 10 км/с при накачке излучением открытого разряда и более 100 км/с – при накачке сильной ударной волной.

В иодном фотодиссоционном лазере сечение поглощения рабочего вещества ( $\text{CF}_3\text{I}$ ,  $\text{C}_3\text{F}_7\text{I}$  и др.) на два порядка меньше ( $\sigma \sim 10^{-19}$  см<sup>2</sup>), и характерное время жизни

поглощающих молекул  $(\sigma I_0)^{-1}$  вблизи источника оказывается сравнимым с временем действия источника накачки, так что бегущая волна просветления по-прежнему не успевает сформироваться и реализуется случай  $D < v$ . При этом слой вещества, поглощающий излучение накачки, прижат к источнику, и мы имеем дело с режимом стоячей (в системе координат, связанной с источником накачки) волны просветления. В данном случае число разложившихся частиц на границе с источником накачки не зависит от начальной концентрации  $N_0$  поглощающего вещества и составляет  $N_0 \tau / \tau_d = I_0 / v$  [9], где  $\tau = l/v$  – время жизни оптического слоя, обусловленное втеканьем вещества в источник накачки при его движении.

Рассмотренная в [53] модель, основанная на монохроматическом направленном излучении, является идеализированной. Очевидно, что такая модель отличается от реальных условий эксперимента, в котором, как правило, используется источник накачки с диаграммой направленности излучения, близкой к ламбертовой, и поглощающее вещество со сложной спектральной зависимостью сечения поглощения. Несмотря на это, она оказывается весьма полезной на уровне приближенных оценок и дает качественно правильную картину пространственных эффектов. В общем случае точное решение уравнений переноса с переменным числом поглощающих частиц возможно лишь численными методами. Более подробно эти вопросы рассмотрены в целом ряде работ (см. [54] и цитируемую там литературу).

Рассмотренный выше механизм просветления за счет фотодиссоциации является не единственным. Например, в смесях  $\text{Cl}_2$  с благородными газами просветление возникает в процессе реакций последних с оптически возбуждаемыми молекулами хлора, а в парах иода – вследствие столкновительной диссоциации нижнего лазерного  $A'$ -состояния, в которое молекулы попадают в результате радиационного распада оптически возбуждаемого верхнего состояния. В обоих случаях, как и при фотодиссоциации, наблюдаются волны люминесценции, обусловленные излучением продуктов возбуждения во фронте волны просветления. Однако в данных конкретных случаях имеется особенность, связанная с тем, что конечными продуктами лазерного цикла являются атомы хлора или иода, которые при достаточно высоких давлениях буферного газа могут рекомбинировать в исходные молекулы со скоростями, сравнимыми со скоростью их образования. Это приводит к экспериментально наблюдаемому уменьшению скорости фотохимической волны разложения и к переходу в режим стоячей волны с увеличением давления буферного газа [55].

Наблюдение динамики распространения волн просветления по люминесценции продуктов возбуждения из их фронта используется в настоящее время в качестве метода спектрально-селективной динамической актинометрии мощных источников излучения [40, 56, 57].

Неоднородное по объему активной среды поглощение излучения накачки приводит к появлению оптических неоднородностей, обусловленных выделением тепла в процессе фотохимических реакций и изменением химического состава смеси в области накачки. Это явление иллюстрируется на рис.3, на котором приведена временная развертка интерферограммы, полученная при просвечивании излучением рубинового лазера активной среды  $\text{Kr}_2\text{F}$ -лазера, помещенной в одно из плеч интерферометра Майкельсона с наклоненным зеркалом. Наблюдаемое

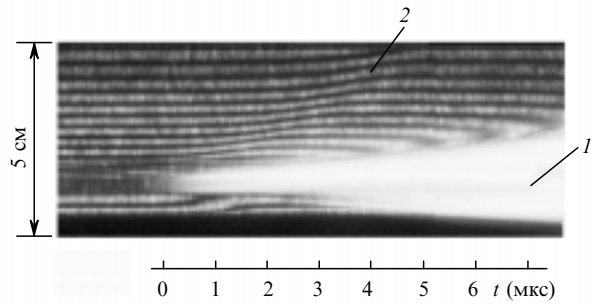


Рис.3. Временная развертка интерферограммы волны просветления в  $\text{KrF}_2$ :

1 – излучение разряда; 2 – искривление интерференционных полос в волне просветления.

на рис.3 смещение полос соответствует уменьшению показателя преломления в волне просветления на  $5 \times 10^{-7}$  за счет изменения химического состава вещества [58]. Оценки газодинамических возмущений в результате неоднородного выделения тепла в среде дают другой знак и на порядок меньшие значения изменения показателя преломления [58]. При аналогичных измерениях для активной среды  $\text{XeF}$ -лазера изменения показателя преломления во фронте волны просветления по абсолютной величине заметно меньше:  $\Delta n = -10^{-7}$  [59].

Неоднородности показателя преломления в активной среде приводят к увеличению расходимости лазерного излучения, которую для плоскопараллельного резонатора можно оценить по формуле [60]  $\theta = 2(2\Delta n)^{1/2}$ . Для  $\text{XeF}$ -лазера это соотношение дает  $\theta = 10^{-3}$  рад, что близко к экспериментально наблюдаемым значениям.

## 5. Лазеры на основе вторичных фотохимических реакций

### 5.1. Реакции атомов VI группы

Фотохимические лазеры на молекулярных переходах  $\text{S}_2$  и  $\text{XeO}$  являются наиболее яркими примерами плодотворности использования вторичных фотохимических процессов для улучшения условий получения лазерной генерации. Исторически возникновение этих лазеров связано с предложением использовать в качестве активных сред фотодиссоционных лазеров атомы VI группы (главной подгруппы). Это предложение было впервые высказано в 1965 г. в рамках проекта мощного фотодиссоционного лазера [1] как альтернативы иодной системе. При этом отмечались следующие обстоятельства, делающие эти атомы перспективными. Во-первых, переходы между метастабильными состояниями  $^1S_0$ ,  $^1D_2$  и переходы из них в основное состояние  $^3P_1$  позволяли снизить стоков сдвиг лазерного излучения по сравнению со сдвигом излучения иодного фотодиссоционного лазера. Во-вторых, атомы группы кислорода обладают, как правило, значительно более высокой физико-химической активностью в состоянии  $D$  по сравнению с состоянием  $S$ , что значительно облегчает достижение инверсии на переходе  $^1S_0 - ^1D_2$ . Однако, как выяснилось позднее, несмотря на большое различие в константах скоростей тушения указанных состояний, скорости тушения верхнего состояния донорами атомов и продуктами их фотолито довольно высоки. Это делало весьма проблематич-

ной практическую реализацию лазерной генерации на предлагаемых запрещенных переходах при накачке излучением импульсных ламп, открытого разряда и сильной ударной волны, поскольку низкая вероятность перехода (радиационные времена жизни, например, состояния  $^1S_0$  атомов серы и кислорода составляют соответственно  $\sim 0.6$  и  $\sim 0.8$  с) требует накопления довольно больших концентраций атомов в возбужденном состоянии. Однако, как показали эксперименты по фотодиссоциации OCS [11], высокая химическая активность этих состояний может быть использована для получения инверсии во вторичных фотохимических реакциях. Так, в [11] сообщается о получении лазерной генерации на запрещенном молекулярном переходе  $S_2(b^1\Sigma_g^+ - X^3\Sigma_g^-)$ , верхнее состояние которого формируется в результате быстрой реакции атомов S( $^1D_2$ ), образующихся при фотодиссоциации OCS в спектральной области 190–255 нм, с исходным веществом – OCS. Результаты детальных исследований  $S_2$ -лазера изложены в [61].

Несмотря на скромные выходные параметры (удельный энергосъем не более  $5 \times 10^{-4}$  Дж/см<sup>3</sup> [61]),  $S_2$ -лазер исключительно интересен тем, что это – первый лазер, который может быть назван химическим лазером на электронном переходе, хотя такое отнесение справедливо лишь с точки зрения химической кинетики, а не с энергетической точки зрения, поскольку энергия излучения черпается в основном из внешнего источника. Он также впервые продемонстрировал плодотворность идеи об использовании вторичных фотохимических реакций для возбуждения активных сред и тем самым положил начало систематическому поиску новых механизмов возбуждения во вторичных процессах. По сути, начиная с этого момента активный объем лазера стал рассматриваться как химический реактор, который можно использовать для поиска вторичных фото процессов, приводящих к инверсии населенностей электронных состояний продуктов [6]. Не менее важным является также то, что впервые при оптической накачке индуцированное излучение было получено на молекулярном переходе. Дело в том, что, в отличие от атомарного перехода, молекулы в возбужденном состоянии распределены по большому числу внутренних степеней свободы, что при прочих равных условиях снижает коэффициент усиления активной среды на один-два порядка. В связи с этим наблюдение лазерного эффекта на молекулах серы явилось стимулирующим фактором для расширения поиска новых активных сред на основе молекулярных переходов. Наконец, в  $S_2$ -лазере впервые экспериментально обнаружено образование состояния  $S_2(b^1\Sigma_g^+)$  в реакции S( $^1D_2$ ) с OCS и впервые наблюдался переход  $S_2(^1\Sigma_g^+ - ^3\Sigma_g^-)$ .

Плодотворность такого подхода была впоследствии подтверждена на примере ХеО-лазера, в котором запрещенный переход O( $^1S_0 - ^1D_2$ ) стимулировался столкновениями с ксеноном. Физическая сущность этого явления сводится к следующему. При сближении атомов кислорода и ксенона точечная симметрия атомного потенциала кислорода нарушается возмущающим действием потенциала атома ксенона и возникает цилиндрическая симметрия относительно межъядерной оси. При этом правила отбора становятся молекулярными и начинают зависеть от симметрии волновой функции относительно плоскости, содержащей межъядерную ось, и от изменения компонент спина и углового момента вдоль оси симметрии. Аналогичное явление наблюдалось при столкно-

вении и с другими атомами благородных газов – Ar и Kr, а также в других атомах группы кислорода – S и Se [62]. Однако взаимодействие атомов кислорода в состоянии  $^1S_0$  с ксеноном характеризуется гораздо более сильной связью ( $\sim 690$  см<sup>-1</sup> [62]), что позволяет с определенностью говорить об образовании слабосвязанного молекулярного состояния при столкновении этих атомов с участием третьей частицы. Молекулярные правила отбора приводят к возникновению разрешенного в дипольном приближении перехода из  $2^1\Sigma^+$ -состояния комплекса в нижележащее молекулярное состояние  $1^1\Sigma^+$ , коррелирующее с состоянием  $^1D_2$  атома кислорода. При этом нижнее лазерное состояние является короткоживущим – в связи с тем, что его потенциальная кривая пересекается с разлетным потенциалом основного состояния, оно распадается практически за одно колебание атомов.

Эффект столкновительного стимулирования перехода  $^1S_0 - ^1D_2$  значительно (примерно на два порядка [24]) снижает требования к пороговой мощности накачки, необходимой для получения лазерной генерации, что в конечном счете привело к достижению в 1975 г. [12] лазерного эффекта на переходе O( $^1S_0 - ^1D_2$ ), столкновительно стимулированном ксеноном. Атомы O( $^1S_0$ ) образовывались при фотодиссоциации N<sub>2</sub>O излучением открытого разряда в спектральной области короче 150 нм. Результаты детальных исследований лазера изложены в [29]. Анализ полученных результатов позволил сделать практически важный вывод, свидетельствующий о высокой эффективности механизма накачки ХеО-лазера: около 60 % синглетных атомов кислорода, образующихся при накачке, индуцированно излучают через связанное состояние ХеО ( $^1S_0$ ), несмотря на почти газокинетическую скорость тушения возбужденного кислорода.

С точки зрения развития фотохимического метода значение работ по созданию ХеО-лазера состояло прежде всего в том, что удалось существенно уменьшить длину волны генерации и продвинуться в видимый диапазон спектра. Причем достигнута вскоре энергия генерации ХеО-лазера, равная 2.2 Дж, существенно превысила все известные к тому времени значения энергии в видимом диапазоне для газовых лазеров, в том числе лазеров на окислах инертных газов с накачкой электронным пучком [62]. Кроме того, на примере ХеО-лазера впервые были продемонстрированы высокие излучательные характеристики открытого разряда в ВУФ области и перспективность использования этого излучения для накачки фотохимических лазеров. Впоследствии это было экспериментально подтверждено прямыми фотоэлектрическими измерениями [30]. Освоение ВУФ области спектра наряду с использованием вторичных фотохимических процессов оказало решающее влияние на развитие фотохимического метода накачки и привело в дальнейшем к реализации целого ряда новых механизмов коротковолновой лазерной генерации, рассматриваемых ниже. Наконец, это был первый эксимерный лазер с фотохимической накачкой.

В связи с обсуждавшейся выше возможностью получения лазерной генерации на атомах VI группы следует сказать, что появление впоследствии более мощных по сравнению с обычными импульсными лампами источников на основе эксимерного излучения, возбуждаемого с помощью электронного пучка, позволило достичь лазерного эффекта на переходе S( $^1S_0 - ^1D_2$ ) при фотолизе OCS [63] и на переходах Se( $^1S_0 - ^1D_2$ ,  $^1S_0 - ^3P_1$ ) при фотолизе

ОCSe [64, 65]. В отличие от источников открытого типа, источники эксимерного излучения отделены от активной среды, что позволило независимо оптимизировать ее состав и получить доплеровскую ширину линии усиления, повысив тем самым коэффициент усиления.

**5.2. Смеси KrF<sub>2</sub> с благородными газами и азотом**

Лазеры на основе фотодиссоциации паров KrF<sub>2</sub>, как и обсуждаемые ниже активные среды на смесях Cl<sub>2</sub> с благородными газами, являются ярким примером того, как оптическое возбуждение позволяет легко управлять кинетикой активных сред, направляя химические реакции по тем или иным каналам с помощью изменения состава рабочей смеси и спектра накачки и сохраняя при этом высокий квантовый выход люминесценции. На рис.4 изображена схема процессов при оптическом возбуждении смесей KrF<sub>2</sub> с Xe, Kr и N<sub>2</sub>. Пары KrF<sub>2</sub> при поглощении излучения в области широкого континуума с максимумом на 164 нм диссоциируют с образованием эксимеров KrF(B) (квантовый выход 41% ± 11% [66]), излучающих в области 248 нм на переходе B – X в основное состояние. Утилизация KrF(B) во вторичных процессах различна в зависимости от состава и давления рабочей смеси. Так, при небольших добавках ксенона образуется XeF(B) с выходом, близким к единице [66, 67]. В смеси с криптоном при давлении последнего порядка 1 атм KrF(B) в трехчастичных процессах образует эксимер Kr<sub>2</sub>F\* [68]; при этом люминесценция KrF(B) полностью исчезает. Неожиданный эффект был получен при замене Kr на N<sub>2</sub>, которая не только не привела к исчезновению излучения Kr<sub>2</sub>F\* на λ = 420 нм, но и усилила его. Как было установлено [68], в этом случае Kr<sub>2</sub>F\* образуется в результате обменных реакций атомов криптона, которые нарабатываются при фотохимическом разложении KrF<sub>2</sub> под действием излучения открытого разряда, со смешанными четырехатомными эксимерами KrN<sub>2</sub>F\*. Эти результаты позволили сделать важное заключение о существовании ранее не наблюдавшегося эксимера KrN<sub>2</sub>F\*. При этом необходимо отметить, что, несмотря на довольно сложный механизм образования Kr<sub>2</sub>F\*, который

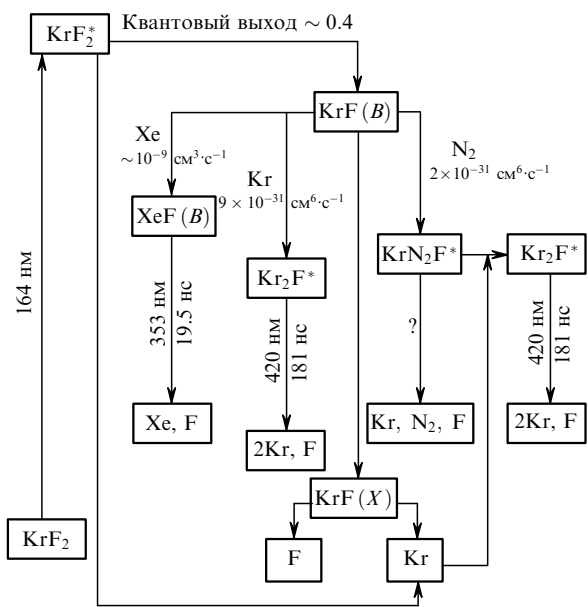


Рис.4. Схема фотопроцессов в смесях KrF<sub>2</sub> с благородными газами и N<sub>2</sub>.

в смесях с азотом включает в себя три стадии химических превращений, причем на одной из них реагируют между собой продукты фотохимических процессов, эффективность получения Kr<sub>2</sub>F\* оказывается весьма высокой: около 70% молекул KrF(B) превращается в эксимер Kr<sub>2</sub>F\* [68]. Обнаружение нового эксимера указывает на то, что класс лазерно-активных эксимеров может быть расширен за счет эксимеров более сложной структуры. Действительно, позднее в работе [69] был обнаружен также эксимер SOKrF\*, излучающий в области 280–380 нм при оптическом возбуждении смеси KrF<sub>2</sub>–He–CO.

Лазерная генерация при накачке смесей с KrF<sub>2</sub> излучением открытого разряда наблюдалась на XeF (λ ≈ 350 нм) в смеси KrF<sub>2</sub>:Xe:N<sub>2</sub>:Ar = 4:6:160:1500 мм рт.ст. [67] и на Kr<sub>2</sub>F (λ ≈ 450 нм) в смесях KrF<sub>2</sub>:N<sub>2</sub> = 1:1500 мм рт.ст. и KrF<sub>2</sub>:CF<sub>4</sub>:Kr = 1:300:1200 мм рт.ст. [19].

**5.3. Смеси Cl<sub>2</sub> с благородными газами**

Другим примером, демонстрирующим эффективное управление фотохимическими реакциями, является оптическое возбуждение смеси молекулярного хлора с благородными газами (рис.5). При возбуждении в области λ = 137 нм в присутствии аргона происходит синглет-триплетная релаксация хлора в состоянии <sup>3</sup>P<sub>2g</sub>, излучающего на переходе в состояние <sup>3</sup>P<sub>2u</sub> (λ = 258 нм) с квантовым выходом люминесценции, составляющим 55% в расчете на один поглощенный квант накачки [70]. В присутствии Kr или Xe возбужденный хлор образует эксимеры KrCl(B) или XeCl(B), излучающие на B – X-переходе в областях 222 и 308 нм с квантовыми выходами люминесценции 70% и 80% соответственно [70]. В смеси с ксеноном при увеличении давления последнего до ~1 атм практически весь XeCl\* связывается в Xe<sub>2</sub>Cl\*, излучающий в области 490 нм с квантовым выходом люминесценции ~75% [71]. На рис.5 показан также процесс образования ArCl\* при более коротковолновом возбуждении хлора, исследовавшийся в [72]. Измеренные в [70] константы скоростей реакций возбужденных молекул хлора столь же высоки, как и константы для гарпунных реакций возбужденных атомов благородных газов с галогенами [62].

Как показали оценки [70], лазерная генерация при накачке излучением открытого разряда в области 137 нм

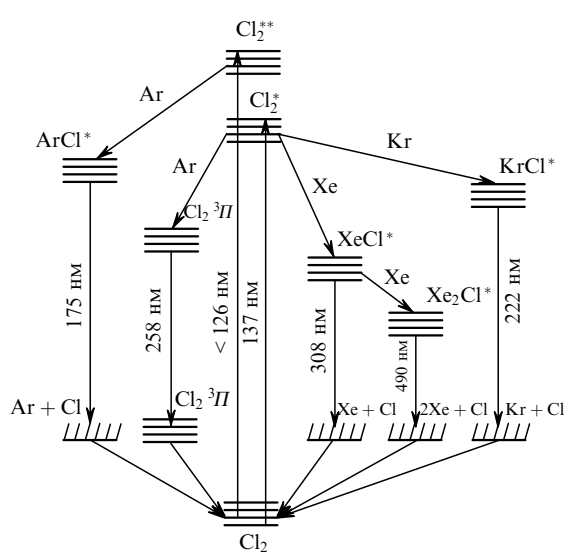


Рис.5. Схема фотопроцессов в смесях Cl<sub>2</sub> с благородными газами.

достижима практически на всех указанных на рис.5 продуктах реакций в смесях хлора с благородными газами  $\text{Cl}_2^*$  ( $\lambda = 258$  нм),  $\text{XeCl}^*$  ( $\lambda = 308$  нм),  $\text{Xe}_2\text{Cl}^*$  ( $\lambda = 490$  нм) и  $\text{KrCl}^*$  ( $\lambda = 222$  нм). Для  $\text{ArCl}^*$  таких оценок не проводилось из-за недостатка необходимых данных. Позднее эти выводы были подтверждены для  $\text{Xe}_2\text{Cl}^*$  [13] и  $\text{KrCl}^*$  [23]. Попытки получения лазерной генерации на других продуктах пока не предпринимались.

Исследования смесей  $\text{Cl}_2$  и  $\text{KrF}_2$  с благородными газами и азотом продемонстрировали многообразие лазерно-активных состояний, которые могут быть получены в первичных и вторичных фотопроцессах, большие сечения реакций с участием возбужденных молекул и близкий к единице выход возбужденных состояний.

#### 5.4. Кинетика активной среды ИФ-лазера

Кинетика активной среды ИФ-лазера интересна тем, что в ней возбуждение верхнего лазерного состояния ИФ ( $D' \ ^3P_{2g}$ ) в смеси  $\text{CF}_3\text{I} - \text{NF}_3 - \text{Ar}$  осуществляется одновременно в первичном и вторичном фотохимических процессах [17]: при фотодиссоциации  $\text{CF}_3\text{I}$  одновременно образуются продукты в состояниях ИФ ( $D' \ ^3P_{2g}$ ) и  $I(^4P_{1/2,3/2})$ , последнее из которых также приводит к возбуждению ИФ ( $D' \ ^3P_{2g}$ ) в реакции с  $\text{NF}_3$ . При этом конкурирующий процесс радиационного распада  $I(^4P)$ , скорость которого, составляющая  $\sim 10^8$  с<sup>-1</sup>, на два порядка превышает скорость реакции с  $\text{NF}_3$ , подавляется за счет пленения излучения.

Достигнутая выходная энергия 0.1 Дж [73] более чем на порядок превысила известные из литературы значения, полученные при накачке быстрым разрядом и электронным пучком. Вместе с тем потенциальные возможности фотохимического возбуждения ИФ-лазера остаются пока неизученными. Принципиально важным следствием результатов его исследования является то, что они подтвердили многообразие вторичных процессов, способных создавать инверсию населенности при фотохимической накачке, и продемонстрировали высокую эффективность механизма расселения нижних уровней лазерного перехода ИФ ( $D' - A'$ ), обеспечивающего квазинепрерывный режим генерации и делающего этот переход весьма привлекательным для получения индуцированного излучения при оптической накачке.

## 6. Лазеры на основе первичных фотопроцессов

### 6.1. Фотодиссоционные лазеры

Лазерная генерация при фотодиссоциации получена на галогенидах ртути  $\text{HgX}$  ( $X = \text{Cl}, \text{Br}, \text{I}$ ),  $\text{XeF}$  и  $\text{CN}$ . Среди них наибольшее развитие получили лазеры на галогенидах ртути и  $\text{XeF}$ .

Принцип действия лазеров на галогенидах ртути основан на фотодиссоциации паров  $\text{HgX}_2$  в спектральной области менее 230 нм с образованием возбужденных радикалов  $\text{HgX}$  в ионном состоянии  $B \ ^2\Sigma_{1/2}^+$ , излучающих на разрешенном переходе в основное ковалентное состояние  $X \ ^2\Sigma_{1/2}^+$ . Привлекательность галогенидов ртути в качестве активных лазерных сред обусловлена рекомбинацией продуктов фотолиза в исходное вещество, что делает принципиально возможным импульсно-периодический или даже непрерывный режим работы в лазере с замкнутым циклом или в отпаянном варианте.

Выходная энергия этих лазеров составляла 0.5–3 Дж при длительности импульсов 3–8 мкс и мгновенном электрическом КПД (в максимуме импульса генерации) 1%. Важно отметить, что достигнутый в фотодиссоционном  $\text{HgBr}$ -лазере удельный энергосъем примерно в 15 раз превысил известные значения удельного энергосъема для других способов накачки (см. [74] и имеющиеся там ссылки).

В процессе исследования  $\text{HgX}$ -лазеров получили существенное развитие технологии, лежащие в основе конструирования фотохимических лазеров. В этой связи необходимо прежде всего отметить, что накоплен большой опыт конструирования высокотемпературных лазерных кювет (рабочая температура лазера  $\sim 250$  °С) и новых источников оптической накачки на основе поверхностного разряда. Кроме того, в этих лазерах впервые был осуществлен импульсно-периодический режим генерации при накачке излучением открытого разряда [14, 16] и впервые получена многоцветная лазерная генерация в многокомпонентной активной среде [75].

В  $\text{XeF}$ -лазере индуцированное излучение наблюдается на двух ионно-ковалентных переходах:  $B - X$  ( $\lambda_g = 353$  нм) и  $C - A$  ( $\lambda_g = 480$  нм). Из двух нижних лазерных состояний  $X$  и  $A$  первое является слабосвязанным (энергия связи  $\sim 1200$  см<sup>-1</sup> [62]), второе – разлетным. Разлетный характер  $A$ -состояния обеспечивает, с одной стороны, практическое мгновенное его расселение в процессе генерации при любых давлениях рабочей смеси, а с другой – обуславливает широкий континуум излучения на переходе  $C - A$  ( $\Delta\lambda = 60$  нм). Состояние  $B$  образуется при фотолизе  $\text{XeF}_2$  в области длин волн менее 220 нм [24, 59]. Состояние  $C$ , лежащее на  $\sim 600$  см<sup>-1</sup> ниже состояния  $B$ , заселяется в результате столкновительной релаксации последнего в присутствии буферного газа.

Впервые лазерная генерация на  $\text{XeF}$  при оптической накачке была получена в 1977 г. на переходе  $B - X$  при использовании в качестве источника накачки взрывающейся проволоочки [20]. Почти одновременно и независимо лазерный эффект на  $\text{XeF}$  ( $B - X$ ) наблюдался при накачке эксимерным излучением  $\text{Xe}_2$ , возбуждаемым пучком релятивистских электронов [76]. Позднее лазерная генерация наблюдалась также на переходе  $\text{XeF}$  ( $C - A$ ) при возбуждении как излучением открытого разряда [18], так и спонтанным излучением  $\text{Xe}_2$  [77].

Исследования  $\text{XeF}$ -лазера с накачкой излучением открытого разряда привели к ряду существенных достижений, позволяющих отнести его к наиболее перспективным и практически полезным фотохимическим лазерам: в УФ и видимом диапазонах спектра получены энергии  $\sim 170$  и  $\sim 120$  Дж соответственно [31], в модельных экспериментах продемонстрирована возможность достижения электрического КПД  $\text{XeF}$ -лазера, составляющего 1% при удельном энергосъеме до 18 Дж/л в УФ и 9.5 Дж/л – в видимом диапазоне [59].

Наиболее полно результаты экспериментальных исследований фотодиссоционного  $\text{XeF}$ -лазера с накачкой излучением открытого разряда представлены в [59]. Один из важных итогов этих исследований состоит в том, что в  $\text{XeF}$  ( $C - A$ )-лазере наиболее отчетливо проявились преимущества оптического возбуждения лазерной генерации в видимом диапазоне перед электронным возбуждением (быстрый разряд или электронный пучок). В отличие от электронной накачки, в основе которой лежат плазмохимические реакции с участием ионизированных и



высоковозбужденных атомов и молекул, при фотохимической накачке инверсия образуется в результате реакций с участием нейтральных частиц, возбужденных в низколежащие состояния. Это отличие приводит к двум практически важным следствиям. Во-первых, при оптической накачке пренебрежимо мало наведенное поглощение, обусловленное ионизованными и высоковозбужденными состояниями, которые при электронной накачке являются источником потерь, препятствующих получению эффективной лазерной генерации в видимом диапазоне. Во-вторых, в отличие от электронной накачки, в фотохимическом ХеF ( $C-A$ )-лазере достаточно слаба конкуренция  $B-X$ -перехода, поскольку населенности  $B$ - и  $C$ -состояний определяются температурой буферного газа, близкой к комнатной, в то время как при электронной накачке основную роль в обмене энергией между этими состояниями играют электроны с характерной для этой накачки температурой около 1 эВ.

Особый интерес представляют эксперименты по получению лазерной генерации на ХеF при взрывной накачке. По-существу, цель этих экспериментов – дать ответ на два принципиальных вопроса: 1) может ли сильная ударная волна служить источником мощного ВУФ излучения для накачки лазеров; 2) можно ли масштабировать лазер, работающий в режиме бегущей волны просветления, пропорционально объему активной среды и энергии накачки, как это было ранее показано для иодного фотодиссоционного лазера, работающего в режиме стоячей ВФД.

Что касается первого вопроса, то метод накачки излучением ударной волны был первоначально развит для возбуждения иодного фотодиссоционного лазера в ближнем ультрафиолете (270 нм). Излучательные свойства ударной волны в ВУФ области спектра ранее никем не исследовались, что, по-видимому, объясняется техническими трудностями, связанными с выводом и транспортировкой ВУФ излучения. Наблюдение в лазерных экспериментах динамики распространения волны фотодиссоциации по люминесценции на переходе ХеF ( $C-A$ ) из ее фронта (см. рис.2) позволили установить, что средняя по длительности накачки яркостная температура ударной волны в криптоне в спектральном диапазоне 130–170 нм составляет  $\sim 20$  кК [56]. Скорость волны просветления на начальном участке достигала 130 км/с, что более чем на порядок превышает скорость волны, наблюдаемую при накачке излучением открытого разряда [59]. В лазере на переходе ХеF ( $B-X$ ) с апертурой 48 см и объемом активной среды 200 л была получена энергия когерентного излучения 1 кДж в импульсе длительностью 24 мкс [56]. Полученные результаты убедительно продемонстрировали перспективность использования сильной ударной волны в качестве источника накачки в ВУФ области спектра.

Второй вопрос связан с тем, что в ХеF-лазере активная среда, которая формируется во фронте ВФД, убегающей от источника накачки, имеет поперечные размеры, много меньшие апертуры лазера. При этом вследствие рефракции поле излучения вытесняется из ВФД в направлении ее движения. Учитывая, что в оптическом резонаторе обратная связь в поперечном направлении осуществляется за счет дифракции на краях апертуры, следует ожидать увеличения порога и снижения энергии генерации при увеличении апертуры лазера за счет роста потерь через выходное полупрозрачное зеркало [78]. Этот эф-

фект действительно наблюдался в первых экспериментах со взрывной накачкой, и лишь секционирование зеркал резонатора диаметром 48 см позволило увеличить выходную энергию ХеF ( $B-X$ )-лазера на порядок величины и достичь энергии 1 кДж [56], причем удельный энергосъем (5 Дж/л) не уступал полученному при накачке излучением поверхностного разряда в лазере значительно меньшей (10 см) апертуры [31]. Позднее вопрос масштабирования активной среды, возбуждаемой в режиме бегущей волны фотохимического разложения, был детально изучен теоретически [79] и было показано, что порог генерации зависит не только от соотношения поперечных размеров активной зоны и апертуры резонатора, но и от согласования их форм.

## 6.2. I<sub>2</sub>-лазер с прямой оптической накачкой

В лазере на молекулярном иоде, генерирующем излучение в УФ диапазоне спектра ( $\lambda_g = 342$  нм), впервые реализован принцип создания инверсной населенности за счет прямого оптического возбуждения молекулярного перехода, ранее предлагавшийся в [80, 81]. Работа лазера осуществляется по четырехуровневой схеме [55], согласно которой излучение источника в области 183 нм возбуждает пары иода в ионное  $D^1\Sigma_u^+$ -состояние, из которого молекулы столкновительно переходят в состояние  $D'^3\Pi_{2g}$ , лежащее на  $\sim 500$  см<sup>-1</sup> ниже. Рабочим является разрешенный переход из состояния  $D'$  в слабосвязанное  $A'^3\Pi_{2u}$ -состояние, диссоциирующее на атомы иода, которые, замыкая лазерный цикл, рекомбинируют в основное молекулярное состояние  $X^1\Sigma_g^+$ . Рекордная на сегодняшний день энергия генерации составляет 27 Дж (удельный энергосъем 18 Дж/л) при накачке излучением взрывающейся проволоочки [82].

Уникальность активной среды на парах иода состоит также в том, что в ней удачно сочетается ряд важных для практики свойств: спектр возбуждения лазера лежит в области прозрачности кварца, среда самовосстанавливается после импульса накачки и обладает низким порогом возбуждения (100–200 Вт/см<sup>3</sup> [82]). Это позволяет создать отпаянный вариант лазера с ламповой накачкой, что было экспериментально продемонстрировано в работе [83], в которой реализован импульсно-периодический режим генерации с частотой 0.5 Гц и энергией 50 мДж в импульсе длительностью 3–5 мкс при возбуждении излучением кварцевой лампы.

Отмеченные выше положительные особенности обобщаемой активной среды наряду с ее высокой теплоустойчивостью [82] позволяют отнести эту среду к числу наиболее перспективных. Впоследствии оптическая накачка I<sub>2</sub> привлекла внимание экспериментальных групп из Резерфордской лаборатории (накачка излучением ArF-лазера [84]), Лос-Аламосской лаборатории (взрывающаяся проволочка [85]) и Японии (разряд по ферриту [35]).

## 7. Заключение

Результаты исследований фотохимического метода возбуждения активных сред позволяют судить о широкополосной оптической накачке газов как о весьма плодотворном и универсальном способе получения лазерной генерации в спектральной области, простирающейся от ИК до УФ диапазона. Имеются предложения о возбуждении фотохимическим способом и других активных сред [42, 86]. В техническом плане фотохимическую на-

качку отличают такие положительные особенности, как простота и низкая стоимость устройств для получения высокой выходной энергии, а также возможность ее увеличения пропорционально активному объему и энергии накачки. Развитый метод оптического возбуждения активных сред с помощью источников накачки открытого типа – высокотемпературного разряда и сильной ударной волны, не имеющих зарубежных аналогов, привел к достижению лазерных параметров, значительно превосходящих полученные другими способами оптической накачки.

Важным результатом этих исследований является также то, что фотохимический метод накачки оказался эффективным средством возбуждения индуцированного излучения на молекулярных переходах. Среди них особое место занимают активные среды с широкополосным усилением –  $\text{XeF}(C-A)$ ,  $\text{Xe}_2\text{Cl}$  и  $\text{Kr}_2\text{F}$ , представляющие практический интерес для усиления фемтосекундных оптических импульсов. Ширина полосы усиления этих сред лежит в диапазоне 60–100 нм, что соответствует длительности спектрально-ограниченных импульсов  $\tau_{\text{lim}} \sim \lambda^2/(c\Delta\lambda) \sim 10$  фс. Вместе с тем газовая природа этих сред в силу их низкой оптической нелинейности допускает прямое усиление фемтосекундных импульсов без использования метода chirpирования, основанного на применении сложных и дорогостоящих систем растяжения и сжатия усиливаемых импульсов. Последнее обстоятельство становится особенно важным при высокой выходной мощности, приближающейся к петаваттному уровню ( $10^{15}$  Вт). Кроме того, из-за сравнительно малых сечений усиления  $\sigma_{\text{st}}$  ( $10^{-17}$ ,  $2.8 \times 10^{-18}$  и  $2.3 \times 10^{-18}$  см<sup>2</sup> для  $\text{XeF}(C-A)$ ,  $\text{Xe}_2\text{Cl}$  и  $\text{Kr}_2\text{F}$  соответственно) плотность энергии насыщения на рабочем переходе  $\varepsilon_{\text{sat}} = hc \times (\lambda\sigma_{\text{st}})^{-1}$ , определяющая выходную энергию с единицы площади апертуры усилителя, достаточно высока (0.04, 0.15 и 0.2 Дж/см<sup>2</sup> для приведенных активных сред соответственно), что позволяет конструировать довольно компактные фемтосекундные системы мультитераваттной мощности. Наконец, стоит привести один из наиболее показательных параметров, характеризующих эти системы, а именно предельно достижимую интенсивность сфокусированного излучения, отнесенную к единице площади выходной апертуры,  $I_f = \varepsilon_{\text{sat}}/(\tau_{\text{lim}}\lambda^2)$ , где  $\lambda^2$  характеризует физический предел области фокусировки излучения дифракционного качества. Для рассматриваемых активных сред этот параметр составляет  $1.5 \times 10^{21}$ ,  $8 \times 10^{21}$  и  $1.8 \times 10^{22}$  Вт/см<sup>2</sup>. Для сравнения: твердотельная система на основе Ti–Sa, наиболее распространенная в диапазоне длительностей 10–100 фс, имеет  $I_f = 1.3 \times 10^{22}$  Вт/см<sup>2</sup>. При этом следует учитывать, что газообразные среды гораздо легче масштабируются. Интересно также отметить, что совместное использование таких сред, как  $\text{Xe}_2\text{Cl}$  и  $\text{Kr}_2\text{F}$ , позволяет практически вдвое расширить полосу усиления и создать благоприятные условия для усиления предельно коротких оптических импульсов. Для достижения выходных мощностей порядка петаваттного уровня или превышающих его, наряду с излучающим разрядом может представить интерес использование сильной ударной волны в качестве источника накачки усилителя фемтосекундных импульсов, характеризующейся крутым фронтом нарастания излучения (менее  $10^{-7}$  с) при выходе детонации из взрывчатого вещества, что важно для получения однородного по всей апертуре коэффициента усиления в

рабочей смеси, оптически плотной для излучения накачки [34].

В настоящее время ведутся работы по созданию фотодиссоционного XeF-усилителя, возбуждаемого излучением многоканального поверхностного разряда, цель которых – выяснение перспектив создания систем мультитераваттной (вплоть до петаваттной) мощности [34, 87–89]. В [87–89] сообщается о первых положительных результатах по усилению фемтосекундных оптических импульсов в таком усилителе.

Автор выражает свою признательность В.С.Зуеву и О.Н.Крохину за плодотворные обсуждения и полезные советы в процессе написания обзора.

1. Бажулин П.А., Басов Н.Г., Крохин О.Н., Ораевский А.Н., Соболев И.И. *Исследование возможности создания мощных газовых квантовых генераторов (Терра-2) (Отчет)* (М., ФИАН, 1965).
2. Зуев В.С., Катулин В.А. *Квантовая электроника*, **24**, 1105 (1997).
3. Раутиан С.Г., Соболев И.И. *ЖЭТФ*, **41**, 2018 (1961).
4. Kasper J.V.V., Pimental G.C. *Appl. Phys. Lett.*, **5**, 231 (1964).
5. Андреева Т.Л., Дудкин В.А., Мальшев В.И., Михайлов Г.В., Сорокин В.Н., Новикова Л.А. *ЖЭТФ*, **49**, 1408 (1965).
6. Basov N.G., Zuev V.S. *Il Nuovo Cimento*, **31B**, 129 (1976).
7. Борович Б.Л., Зуев В.С., Катулин В.А., Михеев Л.Д., Николаев Ф.А., Носач О.Ю., Розанов В.В. *Сильноточные излучающие разряды и газовые лазеры с оптической накачкой* (Итоги науки и техники. Сер. Радиотехника, М.: ВИНТИ, 1978, т. 15).
8. Бредерлов Г., Филл Э., Витте К. *Мощный йодный лазер* (М.: Энергоатомиздат, 1985).
9. Zuev V.S. *J. Rus. Las. Res.*, **19**, 23 (1998).
10. Бабошин В.Н., Добычин С.Л., Зуев В.С., Михеев Л.Д., Павлов А.Б., Старцев А.В., Фоканов В.П. *Квантовая электроника*, **4**, 2057 (1977).
11. Зуев В.С., Кормер С.Б., Михеев Л.Д., Синицын М.В., Соболев И.И. *Письма в ЖЭТФ*, **16**, 222 (1972).
12. Басов Н.Г., Бабейко Ю.А., Зуев В.С., Михеев Л.Д., Орлов В.К., Погорельский И.В., Ставрова Д.Б., Старцев А.В., Яловой В.И. *Квантовая электроника*, **3**, 930 (1976).
13. Басов Н.Г., Зуев В.С., Канаев А.В., Михеев Л.Д. *Квантовая электроника*, **12**, 1954 (1985).
14. Бажулин С.П., Басов Н.Г., Бугримов С.Н., Зуев В.С., Камруков А.С., Кашников Г.Н., Козлов Н.П., Овчинников П.А., Опекан А.Г., Орлов В.К., Протасов Ю.С. *Квантовая электроника*, **13**, 1275 (1986).
15. Бажулин С.П., Басов Н.Г., Зуев В.С., Леонов Ю.С., Стойлов Ю.Ю. *Квантовая электроника*, **5**, 684 (1978).
16. Бажулин С.П., Басов Н.Г., Бугримов С.Н., Зуев В.С., Камруков А.С., Кашников Г.Н., Козлов Н.П., Овчинников П.А., Опекан А.Г., Орлов В.К., Протасов Ю.С. *Квантовая электроника*, **13**, 1017 (1986).
17. Басов Н.Г., Зуев В.С., Михеев Л.Д., Яловой В.И. *Квантовая электроника*, **9**, 1064 (1982).
18. Басов Н.Г., Зуев В.С., Канаев А.В., Михеев Л.Д., Ставрова Д.Б. *Квантовая электроника*, **6**, 1074 (1979).
19. Басов Н.Г., Зуев В.С., Канаев А.В., Михеев Л.Д., Ставрова Д.Б. *Квантовая электроника*, **7**, 2660 (1980).
20. Басов Н.Г., Зуев В.С., Михеев Л.Д., Ставрова Д.Б., Яловой В.И. *Квантовая электроника*, **4**, 2453 (1977).
21. Басов Н.Г., Дацкевич И.С., Зуев В.С., Михеев Л.Д., Старцев А.В., Широких А.П. *Квантовая электроника*, **4**, 638 (1977).
22. Mikheev L.D., Shirokikh A.P., Startsev A.V., Zuev V.S. *Opt. Commun.*, **26**, 237 (1978).
23. Басов Н.Г., Зуев В.С., Канаев А.В., Михеев Л.Д. *Квантовая электроника*, **12**, 2197 (1985).
24. Zuev V.S., Mikheev L.D. *Photochemical Lasers* (Chur: Harwood Acad. Publ., 1991).
25. Басов Н.Г., Борович Б.Л., Зуев В.С., Розанов В.В., Стойлов Ю.Ю. *ЖТФ*, **40**, 516 (1970); **40**, 805 (1970).
26. Борович Б.Л., Григорьев П.Г., Зуев В.С., Розанов В.В., Старцев А.В., Широких А.П. *Труды ФИАН*, **76**, 3 (1973).
27. Пухов А.М. *ЖПС*, **22**, 922 (1975).

28. Борович Б.Л., Зуев В.С., Налегач Е.Н., Старцев А.В. *Квантовая электроника*, **1**, 1442 (1974).
29. Зуев В.С., Михеев Л.Д., Погорельский И.В. *Труды ФИАН*, **125**, 104 (1980).
30. Борович Б.Л., Зуев В.С., Михеев Л.Д., Ставровский Д.Б., Старцев А.В. *Труды VIII конф. по когерентной и нелинейной оптике* (Тбилиси, 1976, с. 138).
31. Зуев В.С., Кашников Г.Н., Мамаев С.Б. *Квантовая электроника*, **19**, 1047 (1992).
32. Бугримов С.Н., Камруков А.С., Кашников Г.Н., Козлов Н.П., Овчинников П.А., Опекан А.Г., Протасов Ю.С., Щепанюк Т.С. *Квантовая электроника*, **13**, 76 (1986).
33. Knecht B.A., Fraser R.D., Wheeler D.J., Zietkiewich C.J., Mikheev L.D., Zuev V.S., Eden J.G. *Opt. Lett.*, **20**, 1011 (1995).
34. Малиновский Г.Я., Мамаев С.Б., Михеев Л.Д., Москалев Т.Ю., Сентис М.Л., Черемискин В.И., Яловой В.И. *Квантовая электроника*, **31**, 617 (2001).
35. Watanabe K., Kashiwabara S., Fujimoto R. *Appl. Phys. Lett.*, **50**, 629 (1987).
36. Kashiwabara S., Watanabe K., Fujimoto R. *J. Appl. Phys.*, **63**, 787 (1987).
37. Митько С.В., Очкин В.Н., Парамонов А.В., Широких А.П. *Кратк. сообщ. физ. ФИАН*, № 11, 47 (1989).
38. Gross R.W.F., Schneider L.E., Amimoto S.T. *Appl. Phys. Lett.*, **53**, 2365 (1988).
39. Sentis M.L., Tcheremiskine V.I., Delaporte Ph.C., Mikheev L.D., Zuev V.S. *Appl. Phys. Lett.*, **70**, 1198 (1997).
40. Зуев В.С., Михеев Л.Д., Ставровский Д.Б. *Квантовая электроника*, **11**, 1750 (1984).
41. Аржанов В.П., Борович Б.Л., Зуев В.С., Казанский В.М., Катулин В.А., Кириллов Г.А., Кормер С.Б., Куратов Ю.В., Куряпин А.И., Носач О.Ю., Синицын М.В., Стойлов Ю.Ю. *Квантовая электроника*, **19**, 135 (1992).
42. Mikheev L.D. *J. Sov. Las. Res.*, **11**, 288 (1990).
43. Борович Б.Л., Зуев В.С. *ЖЭТФ*, **58**, 1794 (1970).
44. Eden J.G., Tran H.C., Zuev V.S. *J. Rus. Las. Res.*, **19**, 120 (1998).
45. Eden J.G., Jones R.B., Zuev V.S. *J. Rus. Las. Res.*, **20**, 399 (1999).
46. Зуев В.С., Иден Д.Г., Тран Х.С. *Оптика и спектроскопия*, **90**, 586 (2001).
47. Borovich B.L., Zuev V.S., Stavrovskii D.B. *J. Quant. Spectr. Rad. Transfer.*, **13**, 1241 (1973).
48. Борович Б.Л., Зуев В.С., Ставровский Д.Б. *Квантовая электроника*, **1**, 2048 (1974).
49. Зуев В.С., Канаев А.В., Михеев Л.Д. *Квантовая электроника*, **14**, 1393 (1987).
50. Zuev V.S., Kanaev A.V., Mikheev L.D. *Relaxation processes in excited xenon. Preprint FIAN № 95* (М., 1988).
51. Зуев В.С., Канаев А.В., Михеев Л.Д. *Квантовая электроника*, **14**, 1670 (1988).
52. Kanaev A.V., Kink M.F., Kink R.A., Maksimov Yu.A., Mikheev L.D., Niedrice H.E., Zuev V.S. *Gas-phase xenon as a promising active medium for efficient VUV-lasing under optical pumping. Preprint FIAN № 119* (М., 1991).
53. Борович Б.Л., Зуев В.С., Катулин В.А., Носач О.Ю., Тюрин Е.Л., Щеглов В.А. *Квантовая электроника*, **2**, 88 (1972).
54. Tcheremiskine V.I., Mikheev L.D., Sentis M.L., Zuev V.S. *Phys. Rev. A*, **65**, 013808 (2002).
55. Зуев В.С., Михеев Л.Д., Широких А.П. *Квантовая электроника*, **9**, 573 (1982).
56. Анисимов С.В., Земсков Е.М., Зуев В.С., Казанский В.М., Кашников Г.Н., Михеев Л.Д., Нестеров Р.О., Соколов В.В., Ставровский Д.Б., Черемискин В.И. *Спектрально-селективная динамическая актинометрия ВУФ излучения движущегося газодинамического разрыва. Препринт ФИАН № 140* (М., 1989).
57. Tcheremiskine V.I., Sentis M.L., Delaporte Ph.C., Zuev V.S., Mikheev L.D. *J. Appl. Phys.*, **80**, 2094 (1996).
58. Зуев В.С., Канаев А.В., Михеев Л.Д. *Квантовая электроника*, **10**, 1868 (1983).
59. Mikheev L.D., Stavrovskii D.B., Zuev V.S. *J. Rus. Las. Res.*, **16**, 427 (1995).
60. Носач О.Ю., Орлов Е.П. *Квантовая электроника*, **3**, 1423 (1976).
61. Зуев В.С., Михеев Л.Д., Яловой В.И. *Квантовая электроника*, **2**, 799 (1975).
62. *Excimer Lasers*. Ed. by Ch.K.Rhodes (Berlin–Heidelberg: Springer Verlag, 1984).
63. Powell H.T., Prosnitz D., Schleicher B.R. *Appl. Phys. Lett.*, **34**, 571 (1979).
64. Powell H.T., Schleicher B.R. *J. Chem. Phys.*, **73**, 5059 (1980).
65. Powell H.T., Ewing J.J. *Appl. Phys. Lett.*, **33**, 135 (1978).
66. Бибинов Н.К., Виноградов И.П., Михеев Л.Д., Ставровский Д.Б. *Хим. физика*, **5**, 615 (1986).
67. Зуев В.С., Исаев И.Ф., Канаев А.В., Михеев Л.Д., Ставровский Д.Б., Щепетов Н.Г. *Квантовая электроника*, **8**, 373 (1981).
68. Зуев В.С., Канаев А.В., Михеев Л.Д., Ставровский Д.Б. *Квантовая электроника*, **8**, 2183 (1981).
69. Бибинов Н.К., Виноградов И.П. *Оптика и спектроскопия*, **57**, 729 (1984).
70. Зуев В.С., Канаев А.В., Михеев Л.Д. *Квантовая электроника*, **11**, 354 (1984).
71. Зуев В.С., Канаев А.В., Михеев Л.Д. *Квантовая электроника*, **14**, 1397 (1987).
72. Möller T., Jordan B., Zimmerer G., Haaks D., Le Calve J., Castex M.-C. *Z. Phys.D-Atoms, Molecules and Clusters*, **4**, 73 (1986).
73. Михеев Л.Д. *Изв.АН СССР. Сер. физич.*, **51**, 1377 (1987).
74. Бажулин С.П., Басов Н.Г., Бугримов С.Н., Зуев В.С., Камруков А.С., Козлов Н.П., Опекан А.Г., Протасов Ю.С. *Письма в ЖТФ*, **12**, 1423 (1986).
75. Бажулин С.П., Басов Н.Г., Бугримов С.Н., Зуев В.С., Камруков А.С., Кашников Г.Н., Козлов Н.П., Овчинников П.А., Опекан А.Г., Протасов Ю.С. *Квантовая электроника*, **13**, 1515 (1986).
76. Eden J.G. *Opt. Lett.*, **3**, 94 (1978).
77. Bischel W.K., Nakano H.N., Eckstrom D.J., Hill R.M., Huestis D.L., Lorents D.C. *Appl. Phys. Lett.*, **34**, 565 (1979).
78. Анисимов С.В., Ермилов Ю.А., Земсков Е.М., Зуев В.С., Казанский В.М., Кашников Г.Н., Михеев Л.Д., Нестеров Р.О., Ставровский Д.Б., Черемискин В.И. *Лазерная генерация на C – A переходе эксимера ХеF при накачке ВУФ излучением ударной волны. Препринт ФИАН № 8* (М., 1993).
79. Орлов Е.П. *Труды ФИАН*, **222**, 96 (1992).
80. Раутиан С.Г., Собельман И.И. *Оптика и спектроскопия*, **10**, 134 (1961).
81. Борович Б.Л. *ЖЭТФ*, **61**, 2293 (1971).
82. Зуев В.С., Михеев Л.Д., Широких А.П. *Квантовая электроника*, **10**, 904 (1983).
83. Зуев В.С., Михеев Л.Д., Старцев А.В., Широких А.П. *Квантовая электроника*, **6**, 2033 (1979).
84. Shaw M.J., Edwards C.B., O'Neill F., Fotakis C., Donovan R.J. *Appl. Phys. Lett.*, **37**, 346 (1980).
85. Jones C.R., Ware K.D. *Proc. Los Alamos Conf. Optics'83* (Bellingham, 1983, p. 160).
86. Зуев В.С., Канаев А.В., Михеев Л.Д. *Квантовая электроника*, **11**, 197 (1984).
87. Malinovskii G.Ya., Mamaev S.B., Mikheev L.D., Mislavskii V.V., Moskalev T.Yu., Tcheremiskine V.I., Yalovoi V.I., Sentis M.L. *Tech. Digest IQEC 2002* (Moscow, 2002, p.431).
88. Tcheremiskine V.I., Sentis M.L., Mikheev L.D., Moskalev T.Yu. *Tech. Digest IQEC 2002* (Moscow, 2002, p. 130).
89. Tcheremiskine V.I., Sentis M.L., Mikheev L.D. *Appl. Phys. Lett.*, **81**, 403 (2002).