

# Эксимерный лазер на жидким ксеноне

**А.Г.Молчанов**

*Приведены характеристики и представлена история создания первого эксимерного лазера. Рассмотрены пороговые условия генерации, современная теория активных сред и перспективы развития эксимерных лазеров на конденсированных инертных газах. Показано, что в опытах по накачке жидкого ксенона была получена генерация одновременно на нескольких типах эксимеров, включая эксимеры в жидкой и газовой фазах.*

**Ключевые слова:** эксимеры, эксимерные лазеры, автолокализованные экситоны, кристаллы инертных газов.

## 1. Введение

История создания эксимерных лазеров является примером того, насколько непредсказуемым порою бывает путь от первоначальной идеи до ее практического воплощения. Идея использовать кристаллы инертных газов для генерации лазерного излучения на зона-зонных или экситонных переходах возникла у автора настоящей работы в 1964 г. во время теоретических исследований свойств экситонов в молекулярных кристаллах (именно кристаллы инертных газов послужили моделью для введения понятия об экситонах [1]), проводимых в аспирантуре ФИАНа под руководством В.Л.Гинзбурга. Этой идеей автор поделился с В.А.Данилычевым, занимавшимся в лаборатории Н.Г.Басова электронным возбуждением полупроводников. Н.Г.Басов сразу же оценил важность открывающегося направления, в первую очередь с точки зрения продвижения полупроводниковых лазеров в ВУФ область спектра, и включил эту тему в план работ своей лаборатории квантовой радиофизики (КРФ) ФИАНа.

Открывая в 1966 г. IV Международную конференцию по квантовой электронике, Н.Г.Басов сообщил о намерении получить в лаборатории КРФ ФИАНа генерацию ВУФ излучения в конденсированных инертных газах. Это сообщение содержало всего два предложения: «В настоящее время мы пытаемся использовать инертные газы при низкой температуре в качестве рабочей среды для получения генерации в далекой УФ области спектра. В соответствии с предварительными оценками, несмотря на наличие широких полос, связанных главным образом с обменным взаимодействием, можно ожидать появления узких линий излучения подобно тому, как это происходит в полупроводниках, т. к. коллективные возбуждения атомов при низкой температуре должны концентрироваться вблизи края линии» [2].

Смысл слов «коллективные возбуждения атомов» и «ожидать появления узких линий излучения подобно то-

му, как это происходит в полупроводниках» означал в то время надежду на получение генерации на переходах свободных экситонов с испусканием фононов, как это происходило в кристаллах CdS при температурах жидкого азота [3].

Подготавливая вместе с В.А.Данилычевым материалы к этой конференции, касающиеся кристаллов инертных газов, автор, который стал с 1965 г. сотрудником лаборатории КРФ, предложил Н.Г.Басову показать на конференции зонную структуру кристаллического ксенона. Однако Н.Г.Басов отклонил это предложение, интуитивно понимая, что дело здесь не в деталях, а в общем направлении работ. И действительно, вскоре выяснилось, что ни зонная структура, ни коллективные возбуждения свободных экситонов не играют существенной роли. Следует подчеркнуть, что до этого времени ни о каких эксимерных переходах речь не шла. В конце 1966 г. автору попалась на глаза работа по люминесценции конденсированных инертных газов при облучении их альфа-частицами [4]. В этой работе наблюдавшие полосы люминесценции в конденсированной фазе почти совпадали с полосами люминесценции молекул инертных газов. После этого стало очевидным, что генерацию следует ожидать не на переходах свободных экситонов, а в первую очередь на переходах эксимеров, которые в кристаллах инертных газов и щелочно-галоидных кристаллах обычно называются локализованными или автолокализованными экситонами.

В работе [5] впервые был рассчитан порог генерации на эксимерных переходах в конденсированных инертных газах, накачиваемых пучком быстрых электронов. Оказалось, что характеристические пороговые удельные мощности накачки должны составлять  $\sim 100 \text{ МВт}/\text{см}^3$ . Такие высокие удельные мощности типичны для полупроводниковых лазеров, и их получение стало возможным, прежде всего, благодаря развитию в середине 60-х гг. метода накачки этих лазеров пучком быстрых электронов. В [5] были также отмечены как одна из наиболее ярких особенностей активной среды эксимерных лазеров – рост поглощения среды с ростом накачки, так и очень высокая эффективность передачи энергии от инертных газов к примесям и возможность генерации в смесях. В 1969 г. в лаборатории КРФ ФИАН при возбуждении жидкого

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

Поступила в редакцию 23 сентября 2002 г.

ксенона пучком быстрых электронов впервые наблюдалось усиление эксимерного излучения, которое регистрировалось на длине волны  $\lambda = 175$  нм по сужению спектра излучения [6]. Переход от режима усиления [6–8] к режиму генерации, впервые полученной в 1970 г. [9], был совершен благодаря увеличению на порядок мощности электронного пучка. Яркие проявления генерации эксимерного излучения на той же установке, что и в [9], наблюдались в работе [10], где угловая диаграмма направленности сужалась до  $3^\circ$ , а в дальней зоне появлялась интерференционная картина, свидетельствующая о когерентности излучения. В тесной связи с этими экспериментами в [11] была разработана теория энергетической структуры эксимеров в кристаллах инертных газов, которая позволила объяснить механизм люминесценции и генерации инертных газов в конденсированной фазе.

В обзоре [12], вышедшем в начале 1972 г., отмечались близкое сходство между эксимерами в конденсированной и газовой фазах и возможность реализации генерации эксимерного излучения в сжатых инертных газах при электронном возбуждении. В июне 1972 г. в Ливерморской лаборатории (США) такая генерация была получена в газообразном ксеноне [13]. В этой и последующих работах [14–16] со ссылками на [5, 9] сообщалось, что эффективность генерации в газах и ее спектр оказались почти такими же, как и в работе [9] при электронной накачке жидкого ксенона. Генерация эксимерного излучения в конденсированных инертных газах наблюдалась позднее в работах [17–21].

Естественно возникает вопрос, почему не была получена генерация на эксимерных переходах в инертных газах сразу же после опубликования работы [22], в которой была указана возможность использования для генерации лазерного излучения молекул  $\text{Ar}_2^*$ ,  $\text{Kr}_2^*$ ,  $\text{Xe}_2^*$ ,  $\text{Hg}_2$  и т. п. Ответ, по-видимому, заключается в том, что в [22], в отличие от [5], не была рассчитана пороговая интенсивность накачки, которая для рассматриваемых лазеров оказалась на много порядков больше пороговых интенсивностей существовавших в то время газовых лазеров. Об этом свидетельствуют безуспешные попытки получения генерации эксимерного излучения в обычном электрическом разряде [23] с удельной мощностью накачки порядка 1 Вт/см<sup>3</sup>. Широкие полосы излучения эксимеров (их ширина иногда на три порядка и более превышает доплеровскую ширину), а также короткая длина волны, которая для простейших эксимеров инертных газов лежит в ВУФ области спектра, обуславливают высокие пороговые значения удельной мощности накачки этих лазеров – выше сотен киловатт на кубический сантиметр. Получение таких высоких удельных мощностей стало возможным лишь с середины 60-х гг. благодаря развитию метода накачки полупроводниковых лазеров пучком быстрых электронов. Резкое увеличение удельной мощности электрических разрядов произошло начиная с 1971 г., когда для возбуждения  $\text{CO}_2$ -лазеров стали применяться объемные разряды с внешней предионизацией. Таким образом, запуск первого эксимерного лазера именно на жидком ксеноне был обусловлен, с одной стороны, естественным продвижением полупроводниковых лазеров в сторону широкозонных материалов, а с другой – имеющимися в то время мощными источниками для их накачки.

Ниже на основе анализа спектров излучения и расчетов значений выходной интенсивности показано, что в

опытах по накачке жидкого ксенона была получена генерация одновременно на нескольких типах эксимеров, включая эксимеры в жидкой и газовой фазах. С использованием современных представлений о процессах, происходящих в конденсированных инертных газах при больших интенсивностях их возбуждения, построена теория активной среды эксимерного лазера на конденсированном ксеноне.

## 2. Структура уровней энергии и лазерный переход в жидким ксеноне

Близость полос эксимерной люминесценции инертных газов в конденсированной и газовой фазах [4] рождает видимость того, что при интерпретации спектров люминесценции кристаллов инертных газов можно пользоваться энергетической структурой свободных молекул. О том, что это не совсем так, свидетельствуют спектры поглощения кристаллов инертных газов, в которых наблюдаются две водородоподобные серии уровней свободных экситонов  $\Gamma(3/2)$  и  $\Gamma(1/2)$ , отсутствующие в газовой фазе. На рис.1 приведен спектр поглощения кристаллического ксенона, на котором хорошо видны обе эти серии. Вверху указаны положения нижних атомных линий  ${}^3P_1$  и  ${}^1P_1$ , а также ионизационного потенциала  $I_{\text{Xe}} = 12.1$  эВ. В кристалле ионизационный потенциал соответствует пределу (9.28 эВ) нижней водородоподобной серии уровней экситонов  $\Gamma(3/2)$ , что почти на 3 эВ меньше газового потенциала ионизации. Для нижней серии энергии уровней свободных экситонов достаточно хорошо описываются формулой

$$E_n = E_g - \frac{\mu I_H}{\varepsilon_0^2 n^2}, \quad n = 1, 2, 3, \dots, \quad (1)$$

где  $E_g = 9.28$  эВ ширина запрещенной зоны;  $\mu = 0.31$  – эффективная масса экситона (в единицах массы электрона);  $\varepsilon_0 = 2.23$  – диэлектрическая проницаемость кристалла;  $I_H = 13.6$  эВ – потенциал ионизации водорода. При локализации свободных экситонов в кристаллической решетке их энергетические уровни должны пере-

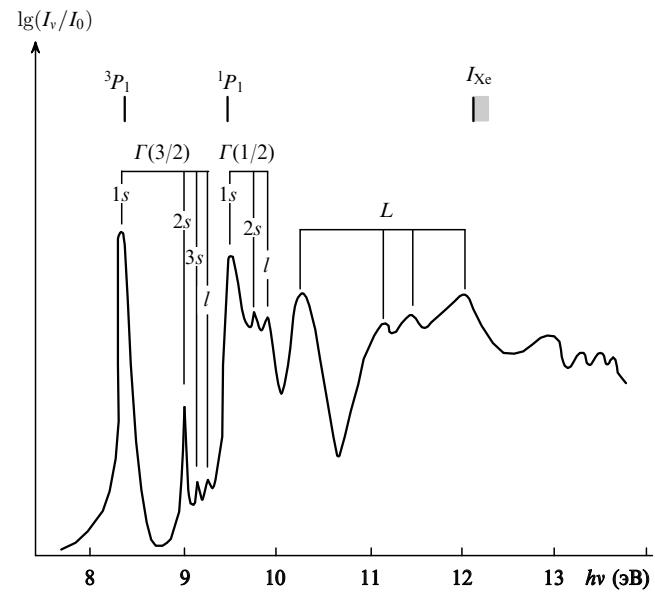


Рис.1. Спектр поглощения кристаллического ксенона при температуре 21 К [24].

ходить в соответствующие потенциальные кривые эксимеров, которые, естественно, не совпадают с потенциальными кривыми свободных молекул. Кроме того, группа симметрии автолокализованного экситона  $D_{2h}$  не совпадает с группой симметрии молекулы инертного газа  $D_{\infty h}$ , и число уровней энергии, а также их классификация в конденсированной и газовой фазах будут различными.

Для того чтобы рассчитать структуру уровней автолокализованных экситонов и найти связь спектров поглощения и люминесценции в конденсированных инертных газах, в работе [11] был проведен теоретико-групповой анализ структур уровней энергии автолокализованных экситонов, двухатомных молекул, атомов и свободных экситонов. Этот анализ позволил классифицировать уровни энергии автолокализованных экситонов в конденсированных инертных газах и связать их с уровнями энергии двухатомных молекул. Для расчета потенциальных кривых автолокализованных экситонов в [11] был использован метод псевдопотенциала, который явно учитывал ридберговский характер уровней. Из проведенных расчетов следовало, что каждая из двух водородоподобных серий уровней энергий свободных экситонов  $\Gamma(3/2)$  и  $\Gamma(1/2)$  состоит, в свою очередь, из двух серий: первой, дипольно-разрешенной и второй (смещенной относительно нее вниз по энергии), запрещенной серии уровней, которая не наблюдается в спектрах поглощения. Оказалось, что от уровней второй, запрещенной серии по мере деформации решетки отщепляется частично разрешенная серия уровней энергии автолокализованных экситонов. Таким образом, было показано, что уровни энергии автолокализованных экситонов в кристаллах инертных газов образуют две главные водородоподобные серии, которые были названы  $\sigma$ - и  $\pi$ -сериями в соответствии с поляризацией их излучения (рис.2).

Время жизни нижнего, частично разрешенного тройного уровня  $1\pi$  в ксеноне оказалось на порядок, а в

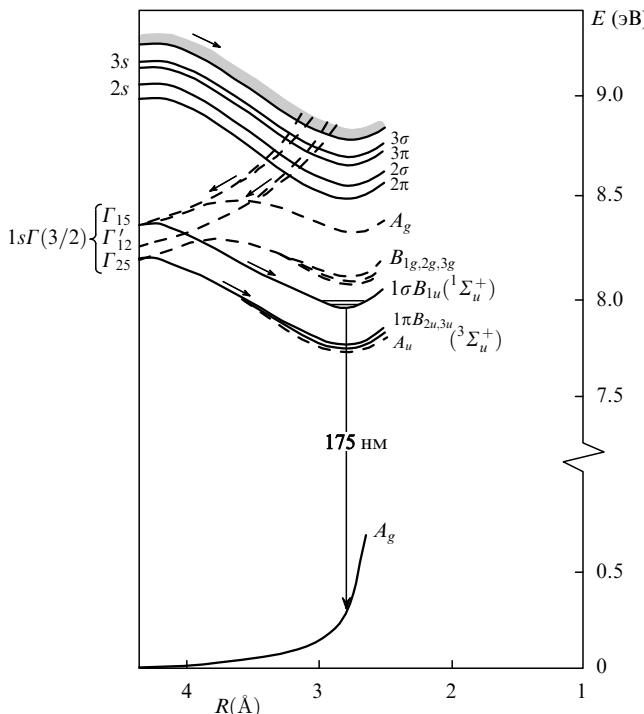


Рис.2. Потенциальные кривые эксимеров и лазерный переход в конденсированном ксеноне.

других инертных газах – на несколько порядков больше, чем время жизни вышележащего уровня  $1\sigma$ . Полученные результаты для кристаллов инертных газов качественно сохраняются и для жидкого состояния вследствие сохранения симметрии ближнего порядка. Отсюда, в частности, следовало, что наблюдавшаяся генерация в первом эксимерном лазере на жидком ксеноне происходила в основном с уровня  $1\sigma$ , а нижележащий уровень  $1\pi$  служил для него резервуаром энергии. Этот результат при соответствующем переобозначении уровня оказался справедлив для всех последующих эксимерных лазеров на инертных газах. Генерация в них происходит при переходе на нижний отталкивающий уровень не с самого нижнего метастабильного эксимерного уровня, а с разрешенного уровня, расположенного над ним. Все же нельзя не отметить, что инертные газы в конденсированном состоянии в чем-то сохраняют оптические свойства газовой фазы. В спектрах поглощения положения низких атомных линий  $^3P_1$  и  $^1P_1$  почти совпадают по энергии с низкими экситонными пиками поглощения, а в спектрах люминесценции ее полосы излучения перекрываются в конденсированной и газовой фазах. Этот дуализм оптических свойств инертных газов, как будет видно ниже, сыграл неожиданную роль при получении генерации в первом эксимерном лазере.

### 3. Пороговые условия генерации эксимерного излучения

Скорость образования электронно-дырочных пар  $W^+$  в конденсированном ксеноне под действием пучка быстрых электронов определяется из выражения

$$W^+ = \frac{W_b}{I_i} = \frac{j_b}{e I_i} \left( \frac{dE}{dx} \right)_{\text{eff}}, \quad (2)$$

где  $W_b$  – удельная мощность накачки;  $I_i = 15.6$  эВ – энергия, идущая на образование одной электронно-дырочной пары [25];  $j_b$  – плотность тока электронного пучка. Эффективная тормозная способность любого вещества связана с начальной энергией электронов в пучке  $E_0$  соотношением [26]

$$\left( \frac{dE}{dx} \right)_{\text{eff}} = \frac{E_0}{0.4 x_r}, \quad x_r = \frac{137^4}{24\pi a_H^2 N_A \rho} \frac{A}{Z} \frac{E_0^2}{mc^2 (mc^2 + E_0)}, \quad (3)$$

где  $x_r$  – максимальный пробег электрона;  $\rho$  – плотность;  $A/Z$  – отношение атомного веса к номеру элемента;  $a_H$  – боровский радиус;  $N_A$  – число Авогадро. В жидком ксеноне ( $\rho = 3.1$  г/см<sup>3</sup>,  $A/Z = 2.43$ ) для электронного пучка с энергией  $E_0 = 0.6$  МэВ максимальный пробег  $x_r = 0.12$  см, эффективная глубина возбуждения  $x_0 = 0.4x_r = 0.05$  см, а удельная мощность  $W_b = E_0 j_b / (ex_0)$  при плотности тока  $j_b = 1$  А/см<sup>2</sup> составляет 12 МВт/см<sup>3</sup>. Простейшее пороговое условие генерации для резонатора с плоскими зеркалами имеет вид [5, 10]

$$g_0 \geq a_i - \frac{\ln(R_1 R_2)}{2L}, \quad (4)$$

где  $R_1, R_2$  – коэффициенты отражения зеркал;  $L$  – длина резонатора, заполненного активным веществом;  $g_0$  и  $a_i$  – ненасыщенные коэффициенты усиления и внутреннего поглощения. Если взять использующиеся в настоящее

время значения [20, 21, 27] сечения индуцированного перехода  $\sigma_0 = 1.5 \times 10^{-17} \text{ см}^2$ , спонтанного времени жизни верхнего лазерного уровня  $\tau_s = 2.2 \times 10^{-9} \text{ с}$  и квантовой эффективности излучения  $\eta_s = 0.5$ , то получим, что для первого эксимерного лазера с коэффициентом поглощения  $a_i = 0.15 \text{ см}^{-1}$  и резонатором длиной  $L = 1 \text{ см}$  с коэффициентами отражения  $R_1 = R_2 = 0.5$  пороговая плотность тока должна, по грубой оценке, составлять  $10 \text{ A/cm}^2$ . Как будет показано ниже, более точные расчеты дают значение  $25 \text{ A/cm}^2$ , что соответствует экспериментальным данным: при  $j_b = 30 \text{ A/cm}^2$  наблюдалось  $30\%$ ное сужение линии [6], а при  $j_b = 150 \text{ A/cm}^2$  – развитая генерация эксимерного излучения [9, 10].

На рис.3 представлен спектр излучения ксенона при различных токах накачки электронным пучком, взятый из работы [9] и продемонстрированный автором настоящей статьи на Международной конференции по люминесценции в 1972 г. [10]. Наряду с центральной полосой 175 нм, соответствующей генерации на эксимерах ксенона в жидкости, в спектре слева присутствовала в два раза менее интенсивная полоса 172 нм, соответствующая излучению эксимеров  $\text{Xe}_2^*$  в газе. Авторы данных работ тогда не задумались, отвечала ли эта последняя полоса достижению эксимерной генерации также и в газообразном ксеноне.

В настоящее время можно сказать вполне определенно, что использованные мощности накачки были достаточны для вскипания поверхностного слоя жидкого ксенона и достижения эксимерной генерации одновременно и в жидкости и в газообразном слое ксенона вблизи поверхности жидкости. Во всяком случае полученная мощность генерации была настолько велика, что при плотностях тока  $j_b = 150 \text{ A/cm}^2$  применяемые в эксперименте алюминиевые зеркала выгорали по форме пятна лазерного пучка от одного-двух выстрелов электронной пушки. Эти зеркала В.А.Данилычев демонстрировал автору неоднократно. Если исходить из соотношения интенсивностей полос на рис.3 и опираться на нижеприведенные

расчеты, то можно с уверенностью сказать, что наблюдавшаяся в 1970 г. в лаборатории Н.Г.Басова генерация происходила сразу на нескольких типах эксимеров, включая эксимеры  $\text{Xe}_2^*$  в газе. Этого могло не случиться, если бы эксперименты, как ранее задумывалось, проводились на кристаллическом ксеноне.

С длинноволновой стороны от центрального пика на  $\lambda = 175 \text{ nm}$  в спектре генерации находятся еще два менее интенсивных пика на  $\lambda = 178.5$  и  $182 \text{ nm}$ . Пик на  $\lambda = 178.5 \text{ nm}$  можно связать с генерацией излучения на  $1\pi$ -эксимерах, т. к. разность энергий квантов излучения на  $\lambda = 175$  и  $178.5 \text{ nm}$  как раз соответствует разности энергий уровней  $1\sigma$ - и  $1\pi$ -эксимеров. Кроме того, для конденсированного ксенона время жизни  $1\pi$ -эксимера всего на порядок меньше времени жизни  $1\sigma$ -эксимера, а статистический вес первого в три раза больше. Поэтому при больших интенсивностях накачки коэффициент усиления на  $1\pi$ -эксимерах может быть всего в три раза меньше коэффициента усиления на  $1\sigma$ -эксимерах, что вполне достаточно для получения генерации на триплетных эксимерах. Пик на  $\lambda = 182 \text{ nm}$ , по-видимому, обусловлен вкладом в генерацию второго колебательного уровня  $1\sigma$ -эксимера или с генерацией на примеси.

То обстоятельство, что эксперименты проводились на жидком, а не на кристаллическом ксеноне, было связано с меньшим коэффициентом поглощения в жидкости по сравнению с кристаллом. В кристаллическом ксеноне поглощение на  $\lambda = 175 \text{ nm}$ , связанное с наличием примесей, в лучшем случае составляло  $0.5 \text{ cm}^{-1}$ , а в жидкости – всего  $0.15 \text{ cm}^{-1}$ . Кроме того, в жидкости при воздействии электронного пучка не накапливались дефекты, которые наблюдались в кристаллическом ксеноне.

#### 4. Кинетика и выходные характеристики эксимерного лазера на жидком ксеноне

Под действием пучка быстрых электронов в конденсированном ксеноне образуются электронно-дырочные пары и свободные экситоны. В процессе автолокализации свободные дырки, которые будем обозначать  $H_1$ , переходят в автолокализованные дырки  $H_2$ , по структуре близкие к молекулярному иону ксенона. В кинетике люминесценции и генерации эксимерного излучения в жидком ксеноне основную роль играют нижние синглетные и триплетные уровни свободных ( $S_1$ ,  $T_1$ ) и автолокализованных ( $S_2$ ,  $T_2$ ) экситонов (рис.4). При диссоциативной рекомбинации электронов и автолокализованных дырок образуются свободные экситоны  $S_1$  и  $T_1$ . Энергии уровней свободных экситонов  $T_1$ ,  $S_1$  и дырок  $H_1$  в кристаллическом ксеноне составляют 8.26, 8.38 и 9.28 эВ, а минимумы потенциальных кривых автолокализованных экситонов  $T_2$ ,  $S_2$  и дырок  $H_2$  – 7.64, 7.76 и 8.78 эВ соответственно.

Скорость накачки нижнего уровня свободного экситона непосредственно электронным пучком  $W^*$  связана со скоростью образования электронно-дырочных пар (2) соотношением

$$W^* = \eta_{\text{ex}} W^+, \quad (5)$$

где  $\eta_{\text{ex}} = 0.06$  [23]. Основная часть констант скоростей процессов, управляющих концентрациями электронов и экситонов, бралась из работ [18–21, 25], за исключением сечений ионизации экситонов электронным ударом и се-

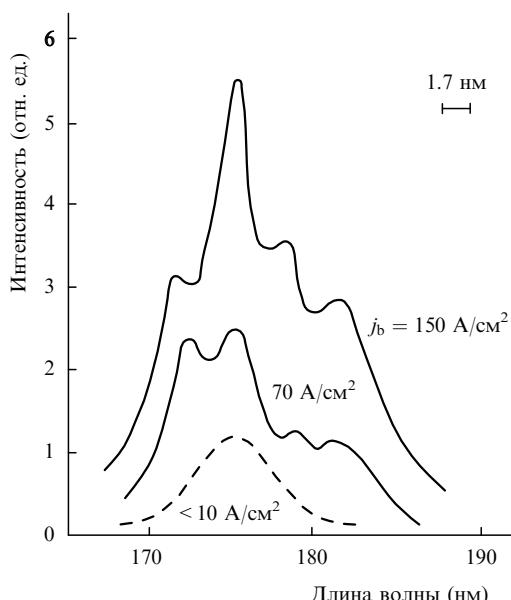


Рис.3. Спектр излучения, полученный при накачке электронным пучком жидкого ксенона в резонаторе с плоскими зеркалами ( $R_1 = R_2 = 0.5$ ) при длительности накачки 10 нс, энергии электронов 600 кэВ и различных плотностях тока пучка. Разрешение спектрометра составляет 1.7 нм.

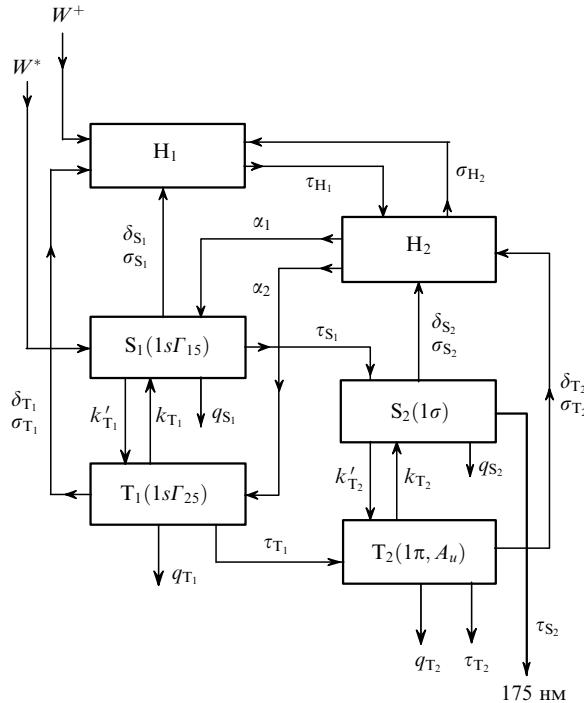


Рис.4. Схема кинетических процессов в активной среде эксимерного лазера на жидком ксеноне, возбуждаемом пучком быстрых электронов.

чений переходов между триплетными и синглетными экситонами. Для этих сечений использовалась аппроксимация [26]

$$Q_j(\varepsilon) = Q_j^m \alpha^\alpha \left( \frac{\varepsilon_j}{\alpha - 1} \right)^{\alpha-1} \frac{\varepsilon - \varepsilon_j}{\varepsilon^\alpha}, \quad (6)$$

где  $\varepsilon$  – энергия электрона; для константы  $\alpha$  и максимального сечения  $Q_j^m$  использовались их значения для атомарного ксенона, а для пороговых энергий  $j$ -го неупругого процесса  $\varepsilon_j$  – соответствующие энергии для экситонов.

Для максвелловской функции распределения электронов константы скоростей реакций ( $\text{см}^3/\text{с}$ ) могут быть представлены в аналитической форме:

$$k_j(T_e) = \langle v Q_j \rangle = 6.7 \times 10^{-9} \varepsilon_j Q_j^m \times \frac{\alpha^\alpha}{(\alpha - 1)^{\alpha-1}} \frac{[\varepsilon_j/(k_B T_e)]^{\alpha-2/3}}{1 + [\varepsilon_j/(k_B T_e)]^{\alpha-1}} \exp[-\varepsilon_j/(k_B T_e)]. \quad (7)$$

Из принципа детального баланса для констант скоростей обратных процессов следует соотношение

$$k'_j(T_e) = k_j(T_e) \exp[-\varepsilon_j/(k_B T_e)]. \quad (8)$$

Кроме того, будем рассчитывать не только концентрацию электронов, как в работе [20], но и отдельно концентрации свободных и автолокализованных дырок, т. к. последние могут быть центрами фотопоглощения и влиять на температурную зависимость интенсивности лазерного излучения. Для конденсированного ксенона это тем более актуально, что в нем константа скорости диссоциативной рекомбинации на два порядка меньше, чем в газе, и вследствие этого концентрация автолокализованных дырок может достигать очень больших величин. Температуру конденсированного ксенона будем рассчи-

тывать по общему энерговкладу от электронного пучка, не детализируя вклад от каждого процесса в отдельности, как это делается в [20]. Такая детализация является явным превышением точности рассматриваемой модели. Система кинетических уравнений, описывающая активную среду лазера на жидком ксеноне, и входящие в нее параметры приведены в Приложении. Отметим только, что коэффициент усиления  $g$  и ненасыщенный коэффициент поглощения рассчитывались по формулам:

$$g = \sigma_0 n_{S_2}, \quad a = a_i + \sigma_{S_1} n_{S_1} + \sigma_{T_1} n_{T_1} + \sigma_{T_2} n_{T_2} + \sigma_{H_2} n_{H_2}, \quad (9)$$

где кроме распределенных потерь на примесях  $a_i = 0.15 \text{ см}^{-1}$  учтено поглощение на свободных экситонах  $S_1$  и  $T_1$ , автолокализованных триплетных экситонах  $T_2$  и автолокализованных дырках  $H_2$ ;  $\sigma_j$  и  $n_j$  – сечение фотопоглощения и концентрация экситонов и дырок.

Насыщающая плотность мощности вычислялась по формуле, которая учитывает неупругие столкновения рабочего эксимера  $S_2$  с электронами и экситонами:

$$I_s = \frac{hv}{\sigma_0} \left[ \frac{1}{\tau_{S_2}} + (k'_{T_2} + \delta_{S_2} + q_{S_2})n_e + \sum_j p_{S_2 j} n_j \right], \quad (10)$$

где  $j = S_1, T_1, S_2, T_2$ ;  $n_e$  – концентрация электронов;  $q_{S_2}, k'_{T_2}$  – константы скоростей тушения рабочего эксимера при переходе в основное и триплетное состояния;  $\delta_{S_2}$  – константа скорости ионизации электронами;  $p_{S_2 j}$  – константы скоростей ионизации (тушения) при столкновениях рабочего эксимера с другими эксимерами и экситонами.

В данной работе рассчитывались выходные характеристики лазера на жидком ксеноне с параметрами, использованными в [9, 10], т. е. с коэффициентами отражения зеркал  $R_1 = R_2 = 0.5$ , длиной активной среды  $L = 1 \text{ см}$ , энергией пучка быстрых электронов 600 кэВ и плотностями тока  $j_b = 1 - 150 \text{ А}/\text{см}^2$ . Импульс накачки выбирался прямоугольным с длительностью 10 нс. Максимальной плотности тока 150 А/ $\text{см}^2$  соответствует удельная мощность накачки 1800 МВт/ $\text{см}^3$  или вложенная за импульс удельная энергия 18 Дж/ $\text{см}^3$ . При нормальном давлении жидкий ксенон существует в интервале температур от 161.3 К (температура плавления) до 165.2 К (температура испарения), т. е. в диапазоне 4 К. В связи с этим при максимальной вкладываемой удельной энергии 18 Дж/ $\text{см}^3$ , без учета энергии, идущей на сублимацию, температура жидкого ксенона должна была повышаться на 30 К, чего с избытком хватало для его испарения. В рассматриваемых условиях испарение ксенона должно начинаться при  $j_b > 20 \text{ А}/\text{см}^2$ , т. е. именно тогда, когда, как показывают расчеты, накачка превышает порог генерации. Для нахождения точных распределений температуры и плотности ксенона вблизи поверхности необходимо решать сложную газодинамическую задачу, учитывающую испарение жидкости и разлет паров ксенона. Поэтому используемое уравнение для температуры имеет оценочный характер и годится, строго говоря, только для конденсированной фазы. Во всяком случае приведенные оценки показывают, что при максимальной плотности тока в эксперименте происходила интенсивная сублимация ксенона с образованием газового слоя, который неминуемо должен принимать участие в генерации эксимерного излучения.

На рис.5 приведены результаты расчетов зависимости коэффициентов усиления и ненасыщенного поглоще-

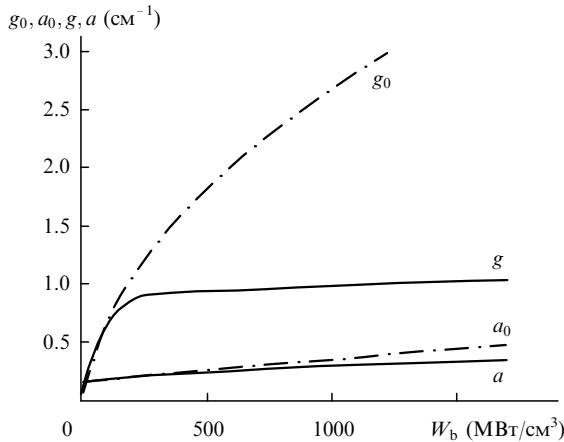


Рис.5. Зависимости от удельной мощности накачки  $W_b$  коэффициентов усиления  $g$  и поглощения  $a$  в жидком ксеноне;  $g_0, a_0$  – те же коэффициенты при выключении поля в резонаторе.

ния от удельной мощности накачки в присутствии поля ( $g, a$ ) и при его выключении ( $g_0, a_0$ ). При расчете значения этих коэффициентов брались в момент окончания импульса  $t = 10$  нс, когда все параметры выходили на квазистационарные значения.

На рис.6 представлены рассчитанные зависимости выходной интенсивности  $I_{\text{out}}$ , интенсивности поля в резонаторе  $I$  и насыщающей плотности мощности  $I_s$  от удельной мощности накачки  $W_b$  в момент окончания импульса. Видна интересная особенность лазера рассматриваемого типа. Вследствие сильного роста  $I_s$  с увеличением  $W_b$  лазер продолжает работать в ненасыщенном режиме даже при огромной мощности накачки. Это позволяет, увеличивая  $W_b$ , увеличивать длину активной области лазера, несмотря на рост поглощения, и выходную интенсивность излучения. Порог генерации (4) наступает при  $j_b = 25 \text{ A/cm}^2$ , что соответствует  $W_b = 280 \text{ MBt/cm}^3$ , хотя усиленное спонтанное излучение дает заметный вклад на выходе уже при  $W_b > 100 \text{ MBt/cm}^3$ . Согласно расчету при плотности тока  $j_b = 150 \text{ A/cm}^2$  максимальная эффективность лазерного излучения по вкладываемой энергии должна составлять 20 %, а удельный энергосъем – 3.6  $\text{Дж}/\text{см}^3$ . При удельной мощности накачки, соответствующей  $j_b = 150 \text{ A/cm}^2$  выходная интенсивность лазера на  $\lambda = 175 \text{ нм}$  была равна  $360 \text{ MBt/cm}^2$ . Согласно рис.3 интенсивность генерации на  $\lambda = 172 \text{ нм}$ , связанная с из-

лучением эксимеров  $\text{Xe}_2^*$  в газовой фазе, должна быть примерно вдвое меньше и составлять  $170 \text{ MBt/cm}^2$ . Интересно отметить, что при  $j_b = 70 \text{ A/cm}^2$  обе полосы генерации на эксимерах ксенона в жидкой и газовой фазах должны иметь одинаковую выходную интенсивность  $I_{\text{out}} \approx 120 \text{ MBt/cm}^2$ .

Из приведенного анализа следует, что эксимерные лазеры на конденсированных инертных газах обладают совершенно уникальной возможностью, которой нет у лазеров других типов: они могут продолжать генерировать излучение при переходе из одного фазового состояния в другое. При этом генерация может происходить на одной или нескольких, близко расположенных частотах. Следует напомнить, что полосы эксимерной люминесценции ксенона во всех агрегатных состояниях перекрываются. Предположим в качестве разумной оценки, что эксимеры  $\text{Xe}_2^*$  в газовой фазе могут генерировать лазерное излучение вплоть до температуры 1000 К. Тогда, быстро вложив в кристаллический ксенон при близкой к нулю температуре удельную энергию накачки 500 Дж/см<sup>3</sup>, при которой достигается температура 1000 К, получаем, что удельный энергосъем лазерного излучения, в принципе, может составлять порядка 100 Дж/см<sup>3</sup>. Возможность реализации таких больших удельных энергий накачки связана, в первую очередь, с ядерной накачкой, которая в применении к полупроводниковым лазерам рассматривалась в работе [28]. Эффективность эксимерного излучения инертных газов в режиме спонтанного излучения, как правило, выше, чем в режиме генерации. Поэтому представляется перспективным рассмотреть системы с ядерной накачкой конденсированных инертных газов в качестве мощных ВУФ источников спонтанного или усиленного спонтанного излучения без использования зеркал.

## 5. Заключение

Как следует из приведенных расчетов, первый эксимерный лазер на жидком ксеноне был одновременно и первым эксимерным газовым лазером. Удивительные оптические свойства конденсированных инертных газов сочетают в себе свойства полупроводников и газов. Поэтому не случайно выбранный в середине 60-х гг. путь продвижения полупроводниковых лазеров в сторону широкозонных материалов привел к созданию эксимерных лазеров, работающих в конденсированной и газовой фазах одновременно. Малоисследованным пока остается поведение конденсированных инертных газов при больших удельных мощностях накачки и низких температурах. В полупроводниках в таких условиях наблюдаются эффекты образования электронно-дырочных капель [29], в конденсированных же инертных газах эти эффекты до сих пор не исследовались. Лазеры на конденсированных инертных газах обладают большой выходной удельной энергией излучения, превышающей 1 Дж/см<sup>3</sup>, которая была продемонстрирована уже при работе первого эксимерного лазера. Принципиальная возможность непрерывной работы лазера при фазовых переходах кристалл – жидкость – газ может привести к увеличению этой величины почти на два порядка. Запуск первого эксимерного лазера, в осуществлении которого Н.Г.Басов сыграл решающую роль, открыл путь к созданию мощных высокоеффективных лазерных источников в ВУФ области спектра. Последние исследования показывают, что

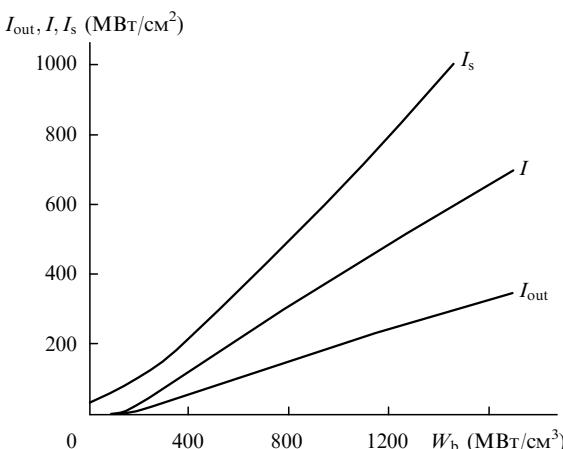


Рис.6. Зависимости от удельной мощности накачки  $W_b$  выходной интенсивности  $I_{\text{out}}$ , интенсивности внутри резонатора  $I$  и насыщающей плотности мощности  $I_s$  в лазере на жидком ксеноне.

возможности использования конденсированных инертных газов в качестве лазерной среды еще далеко не исчерпаны.

## Приложение

Система балансных уравнений для концентраций компонентов активной среды эксимерного лазера на конденсированном ксеноне может быть представлена в следующем виде (см. [20] и рис.4):

$$\begin{aligned} \frac{dn_{H_1}}{dt} &= W^+ - \frac{n_{H_1}}{\tau_{H_1}} + (\delta_{S_1} n_{S_1} + \delta_{T_1} n_{T_1}) n_e \\ &+ \sum_{i,j} p_{ij} n_i n_j + (\sigma_{S_1} n_{S_1} + \sigma_{T_1} n_{T_1} + \sigma_{H_2} n_{H_2}) i_{ph}, \\ \frac{dn_{H_2}}{dt} &= \frac{n_{H_1}}{\tau_{H_1}} - (\alpha_1 + \alpha_2) n_{H_2} n_e + (\delta_{S_2} n_{S_2} + \delta_{T_2} n_{T_2}) n_e \\ &+ \sum_{i,j} p_{ij} n_i n_j + (\sigma_{S_2} n_{S_2} + \sigma_{T_2} n_{T_2} - \sigma_{H_2} n_{H_2}) i_{ph}, \\ \frac{dn_{S_1}}{dt} &= W^* - \frac{n_{S_1}}{\tau_{S_1}} + (\alpha_1 n_{H_2} - \delta_{S_1} n_{S_1} + k_{T_1} n_{T_1} - k'_{T_1} n_{S_1} \\ &- q_{S_1} n_{S_1}) n_e - \sum_j p_{S_1 j} n_j n_{S_1} - \sigma_{S_1} n_{S_1} i_{ph}, \\ \frac{dn_{T_1}}{dt} &= -\frac{n_{T_1}}{\tau_{T_1}} + (\alpha_2 n_{H_2} - \delta_{T_1} n_{T_1} - k_{T_1} n_{T_1} + k'_{T_1} n_{S_1} \\ &- q_{T_1} n_{T_1}) n_e - \sum_j p_{T_1 j} n_j n_{T_1} - \sigma_{T_1} n_{T_1} i_{ph}, \\ \frac{dn_{S_2}}{dt} &= \frac{n_{S_1}}{\tau_{S_1}} + (k_{T_2} n_{T_2} - k'_{T_2} n_{S_2} - \delta_{S_2} n_{S_2} - q_{S_2} n_{S_2}) n_e \\ &- \sum_j p_{S_2 j} n_j n_{S_2} - \frac{n_{S_2}}{\tau_{S_2}} - (\sigma_{S_2} n_{S_2} + \sigma_0 n_{S_2}) i_{ph}, \\ \frac{dn_{T_2}}{dt} &= \frac{n_{T_1}}{\tau_{T_1}} + (k'_{T_2} n_{S_2} - k_{T_2} n_{T_2} - \delta_{T_2} n_{T_2} - q_{T_2} n_{T_2}) n_e \\ &- \sum_j p_{T_2 j} n_j n_{T_2} - \frac{n_{T_2}}{\tau_{T_2}} - \sigma_{T_2} n_{T_2} i_{ph}, \end{aligned}$$

где  $i, j = T_1, S_1, T_2, S_2$ ,

$$\begin{aligned} \frac{3}{2} k_B n_e \frac{dT_e}{dt} &= W^+ \left( I_i - E_g - \frac{3}{2} k_B T_e \right) - \frac{3}{2} k_B \beta \sqrt{T_e} (T_e - T) n_e \\ &+ (k'_{T_1} \varepsilon_{S_1} n_{S_1} - k_{T_1} \varepsilon_{T_1} n_{T_1} + k'_{T_2} \varepsilon_{S_2} n_{S_2} - k_{T_2} \varepsilon_{T_2} n_{T_2}) n_e \\ &- \sum_{m,r} \delta_{m_r} n_{m_r} n_e \left( \varepsilon_{H_r} - \varepsilon_{m_r} + \frac{3}{2} k_B T_e \right) + \sum_k q_k \varepsilon_k n_k n_e \\ &+ \sum_{m,r} \sigma_{m_r} n_{m_r} i_{ph} \left( h\nu - \varepsilon_{H_r} + \varepsilon_{m_r} - \frac{3}{2} k_B T_e \right) \\ &+ \sum_{k,l} \left( \varepsilon_k + \varepsilon_l - \frac{3}{2} k_B T_e \right) n_k n_l, \end{aligned}$$

где составной индекс  $m_r$  образуется из  $m = T, S$  и  $r = 1, 2$ , а  $k, l = m_r$ ,

$$\begin{aligned} \beta_m \frac{di_{ph}}{dt} &= nc(\sigma_0 n_{S_2} - a_i - \sigma_{S_1} n_{S_1} - \sigma_{T_1} n_{T_1} - \sigma_{S_2} n_{S_2} \\ &- \sigma_{T_2} n_{T_2} - \sigma_{H_2} n_{H_2} - a_r) i_{ph} + j_{sp}, \\ \rho c_p \frac{dT}{dt} &= W_b, \\ n_e &= n_{H_1} + n_{H_2}. \end{aligned}$$

В этой системе уравнений  $p_{ij}$  – константы скоростей тушения при взаимном столкновении экситонов  $i$ -го и  $j$ -го сортов;  $q_j$  и  $\delta_j$  – константы скоростей тушения и ионизации экситонов электронами;  $\tau_j$ ,  $\sigma_j$  и  $n_j$  – время жизни, сечение фотоионизации и концентрация экситонов;  $i_{ph}$  – плотность потока фотонов;  $n_e$  и  $T_e$  – плотность и температура электронов;  $T$  – температура среды;

$$j_{sp} = \frac{nc}{\pi} \frac{n_{S_2}}{\tau_{S_2}} \frac{\Delta v_{las}}{\Delta v_{sp}} \frac{\Delta \Omega_{las}}{4\pi}$$

– интенсивность источника спонтанного излучения;  $a_r = -[\ln(1/R_1 R_2)]/(2L)$  – эффективный коэффициент поглощения на зеркалах резонатора;  $\alpha_1 = \alpha_2 = 0.5\alpha_0 \times (300 K/T_e)^{1/2}$  – константы скоростей диссоциативной рекомбинации;  $\alpha_0 = 7 \times 10^{-9} \text{ см}^3/\text{с}$ ;  $n = 1.5$  – показатель преломления конденсированного ксенона;  $\beta = 4 \times 10^7 \text{ с}^{-1} \cdot \text{К}^{-1/2}$  – константа торможения электронов;  $\beta_m = L_m/L = 4$  – отношение расстояния между зеркалами  $L_m$  к длине активной области  $L$ ;  $\Delta v_{las}/\Delta v_{sp} = 0.01$  – отношение ширины линии лазерного излучения к ширине линии спонтанного излучения;  $\Delta \Omega_{las} = 10^{-3}$  – телесный угол лазерного излучения;  $\rho = 3.1 \text{ г}/\text{см}^3$  и  $c_p = 0.17 \text{ Дж}\cdot\text{г}^{-1}\cdot\text{К}^{-1}$  – плотность и удельная теплоемкость жидкого ксенона;  $\sigma_0 = 1.5 \times 10^{-17} \text{ см}^2$  – сечение индуцированного перехода. Константы скоростей ионизации экситонов электронами  $\delta_j$  и константы скоростей переходов между нижними и верхними экситонными уровнями  $k_{T_1}, k_{T_2}$ , зависящие от температуры, рассчитывались по формуле (7) на каждом шагу численного счета. Остальные константы скоростей и сечения реакций приведены в табл.1–4.

Табл.1. Времена жизни (в нс).

| $\tau_{S_1}$ | $\tau_{T_1}$ | $\tau_{S_1, T_1, H_1}$ |
|--------------|--------------|------------------------|
| 2.4          | 27           | $10^3$                 |

Табл.2. Энергии (в эВ).

| $\varepsilon_{H_1}$ | $\varepsilon_{H_2}$ | $\varepsilon_{S_1}$ | $\varepsilon_{T_1}$ | $\varepsilon_{S_2}$ | $\varepsilon_{T_2}$ |
|---------------------|---------------------|---------------------|---------------------|---------------------|---------------------|
| 9.28                | 8.78                | 8.38                | 8.26                | 7.76                | 7.64                |

Табл.3. Константы скоростей тушения (в  $\text{см}^3/\text{с}$ ).

| $q_{S_1, T_1, S_2, T_2}$ | $p_{S_1, S_1, T_1, T_1, S_1}$ | $p_{S_1, T_2, T_1, T_2, S_1, S_2}$ | $p_{S_2, S_2, T_2, S_2, T_2, T_2}$ |
|--------------------------|-------------------------------|------------------------------------|------------------------------------|
| $10^{-9}$                | $10^{-7}$                     | $10^{-8}$                          | $10^{-9}$                          |

Табл.4. Сечения фотопоглощения (в  $10^{-19} \text{ см}^3$ ).

| $\sigma_S$ | $\sigma_{S_2}$ | $\sigma_{T_1}$ | $\sigma_{T_2}$ | $\sigma_{H_2}$ |
|------------|----------------|----------------|----------------|----------------|
| 6          | 2              | 8              | 2              | 2              |

1. Frenkel J. *Phys. Rev.*, **37**, 17; 1276 (1931).
2. Basov N.G. *IEEE J. Quantum Electron.*, **2**, 354 (1966).
3. Басов Н.Г., Богданкевич О.В., Девятков А.Г. *ЖЭТФ*, **8**, 1536 (1966).
4. Jortner J., Meyer L., Rice S.A., Wilson E.G. *J. Chem. Phys.*, **42**, 4250 (1965).
5. Молчанов А.Г., Полуэктов И.А., Попов Ю.М. *ФТТ*, **9**, 3363 (1967).
6. Басов Н.Г., Богданкевич О.В., Попов Ю.М., Данилычев В.А., Молчанов А.Г., Кашиков Г.Н., Балашов Е.М., Ланцов Н.П., Ходкевич Д.Д. *Исследование излучения конденсированных благородных газов при электронном возбуждении (Отчет ФИАН)* (М., 1969).
7. Basov N.G., Balashov E.M., Bogdankevich O.V., Danilychev V.A., Kashnikov G.N., Lantsov N.P. *J. Luminescence*, **1-2**, 834 (1970).
8. Басов Н.Г., Богданкевич О.В., Данилычев В.А., Кашиков Г.Н., Керимов О.В., Ланцов Н.П. *Кр. сообщ. физ. ФИАН*, № 7, 68 (1970).
9. Басов Н.Г., Данилычев В.А., Попов Ю.М., Ходкевич Д.Д. *Письма в ЖЭТФ*, **12**, 473 (1970).
10. Басов Н.Г., Данилычев В.А., Молчанов А.Г., Попов Ю.М., Ходкевич Д.Д. *Тезисы докл. Межд. конф. по люминесценции* (Л., 1972); *Изв. АН СССР. Сер. физич.*, **37**, 494 (1973).
11. Молчанов А.Г. *Препринт ФИАН* № 113 (М., 1971); *Кр. сообщ. физ., ФИАН*, № 4, 9 (1971).
12. Молчанов А.Г. *УФН*, **106**, 165 (1972).
13. Koehler H.E., Ferderber L.J., Redhead D.L., Ebert P.J. *Appl. Phys. Lett.*, **21**, 198 (1972).
14. Wallace S.C., Hodgson R.T., Dreyfus R.W. *Appl. Phys. Lett.*, **23**, 22 (1973).
15. Gerardo J.B., Johnson A.W. *J. Appl. Phys.*, **44**, 4120 (1973).
16. Hughes W.M., Shannon J., Kolb A., Ault E., Bhaumik M. *Appl. Phys. Lett.*, **23**, 385 (1973).
17. Huber E.E. Jr., Emmons D.A., Lerner R.M. *Opt. Commun.*, **11**, 155 (1974).
18. Bush B., Ulrich A., Krotz W., Ribitzik G. *Appl. Phys. Lett.*, **53**, 1172 (1988).
19. Loree T.R., Showalter R.R., Johnson T.M., Birmingham B.S., Hughes W.H. *Opt. Lett.*, **14**, 1051 (1989).
20. Nahme H., Schwentner N. *Appl. Phys. B*, **51**, 177 (1990).
21. Schwentner N. *J. Mol. Struct. (Netherlands)*, **222**, 151 (1990).
22. Houtermans F.G. *Helv. Phys. Acta*, **33**, 933 (1960).
23. Carbone R.J., Litvak M.M. *J. Appl. Phys.*, **39**, 2413 (1968).
24. Baldini G. *Phys. Rev.*, **128**, 1562 (1962).
25. Takahashi T., Konno S., Hamada T., Miyajima M., Kubota S., Nakamoto A., Hitach A., Shibamura E., Doke T. *Phys. Rev. A*, **12**, 1771 (1975).
26. Молчанов А.Г. *Труды ФИАН*, **171**, 54 (1986).
27. Kessler T., Nahme H., Schwentner N., Dossel O. *Opt. Commun.*, **55**, 22 (1985).
28. Молчанов А.Г., Попов Ю.М. *ФТТ*, **11**, 1965 (1969).
29. Келдыш Л.В. В сб. *Экситоны в полупроводниках* (М.: Наука, 1971).