

Внутрирезонаторная лазерная спектроскопия с использованием $\text{Cr}^{2+} : \text{ZnSe}$ -лазера

В.А.Акимов, В.И.Козловский, Ю.В.Коростелин, А.И.Ландман,
Ю.П.Подмарьков, М.П.Фролов

Впервые для высокочувствительной регистрации спектров поглощения методом внутрирезонаторной лазерной спектроскопии применен $\text{Cr}^{2+} : \text{ZnSe}$ -лазер с областью перестройки длин волн 2–3 мкм. Использовался импульсный лазер с длительностью генерации 100 мкс. В различные моменты генерации в спектральном диапазоне 2.41–2.46 мкм были записаны внутрирезонаторные спектры поглощения атмосферного воздуха. Рост чувствительности к внутрирезонаторному поглощению наблюдался во всем исследованном диапазоне длительностей генерации $\text{Cr}^{2+} : \text{ZnSe}$ -лазера.

Ключевые слова: внутрирезонаторная лазерная спектроскопия, твердотельные лазеры, $\text{Cr}^{2+} : \text{ZnSe}$ -лазер.

1. Введение

В настоящее время наблюдается тенденция расширения спектрального диапазона исследований большинства высокочувствительных лазерных абсорбционных методов (диодная спектроскопия, акустооптическая спектроскопия, спектроскопия на основе затухания излучения в резонаторе [1–3]) в ИК область спектра. Это обусловлено стремлением реализовать более низкие пороги обнаружения газов, многие из которых имеют в ИК диапазоне относительно сильные линии поглощения. Внутрирезонаторная лазерная спектроскопия (ВРЛС) [4] в этом смысле не является исключением.

Метод ВРЛС предполагает использование лазеров с широкой полосой генерации, в которых однородная ширина контура усиления значительно превосходит ширину исследуемой линии поглощения. Наиболее значительное продвижение метода ВРЛС в ИК диапазон было реализовано с помощью лазера на центрах окраски в кристалле $\text{KCl} : \text{Li}$, используя который авторы [5] зарегистрировали внутрирезонаторный спектр поглощения атмосферы в окрестности 2.63 мкм. К сожалению, работа с такими лазерами сопряжена со значительными трудностями, обусловленными нестабильностью центров окраски и необходимостью глубокого охлаждения лазерного кристалла.

Существенный прогресс в развитии метода ВРЛС в ИК диапазоне был достигнут с помощью $\text{Co} : \text{MgF}_2$ -лазера [6, 7], имеющего область перестройки 1.6–2.5 мкм и способного работать при комнатной температуре. Однако для работы лазера при комнатной температуре требуется высокая мощность накачки, что сильно затрудняет генерацию длинных лазерных импульсов, необходимых для реализации максимальной чувствительности метода ВРЛС.

Перспективными активными средами для широкополосных лазеров ИК диапазона являются кристаллы халькогенидов, легированные ионами Cr^{2+} [8, 9]. В частности, эффективная генерация в спектральной области 2–3 мкм была продемонстрирована в кристаллах $\text{Cr}^{2+} : \text{ZnS}$ [8, 9], $\text{Cr}^{2+} : \text{ZnSe}$ [9], $\text{Cr}^{2+} : \text{CdSe}$ [10] и $\text{Cr}^{2+} : \text{CdMnTe}$ [11]. Перечисленные кристаллы обладают большой однородной шириной полосы усиления и хорошими термооптическими характеристиками, имеют удобную полосу поглощения, позволяющую использовать для накачки полупроводниковые лазеры, работают при комнатной температуре в импульсном и непрерывном режимах, позволяют реализовать низкие пороги генерации и высокий КПД. Благодаря этим качествам указанные кристаллы являются перспективными активными средами для создания компактных и недорогих внутрирезонаторных лазерных спектрометров ИК диапазона.

В настоящей работе впервые исследуются спектрально-кинетические характеристики широкополосного $\text{Cr}^{2+} : \text{ZnSe}$ -лазера применительно к задачам внутрирезонаторной лазерной спектроскопии.

2. Экспериментальная установка и методика эксперимента

Исследования проводились на экспериментальной установке, созданной на основе аппаратуры, ранее использовавшейся нами для регистрации внутрирезонаторных спектров поглощения с помощью $\text{Co} : \text{MgF}_2$ -лазера [6, 7]. Оптическая схема установки представлена на рис. 1.

Резонатор $\text{Cr}^{2+} : \text{ZnSe}$ -лазера состоял из зеркал 31 и 32 с радиусами кривизны 200 мм, расположенных на расстоянии 365 мм друг от друга. Выходное зеркало 31 имело пропускание 2.2 % для излучения с длиной волны 2.44 мкм, коэффициент отражения заднего зеркала 32 был близок к 100 % в диапазоне 2.3–2.8 мкм. Кристалл $\text{Cr}^{2+} : \text{ZnSe}$ располагался в центре резонатора и был установлен под углом Брюстера. Активный элемент лазера с поперечными размерами 10 × 10 мм и толщиной 2.9 мм был изготовлен из монокристалла $\text{Cr}^{2+} : \text{ZnSe}$ (концентрация ионов Cr^{2+} составляла $5 \times 10^{18} \text{ см}^{-3}$), выращенного из паровой фазы и легированного непосредственно

В.А.Акимов, В.И.Козловский, Ю.В.Коростелин, А.И.Ландман, Ю.П.Подмарьков, М.П.Фролов Физический институт им.П.Н.Лебедева РАН, Россия, 119991 Москва, Ленинский просп., 53; e-mail: frolovmp@x4u.lebedev.ru

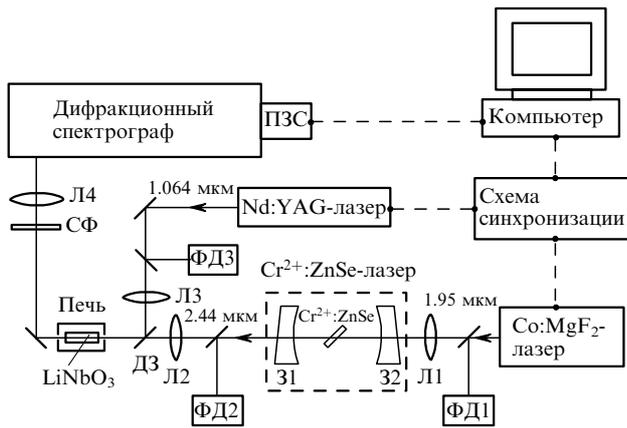
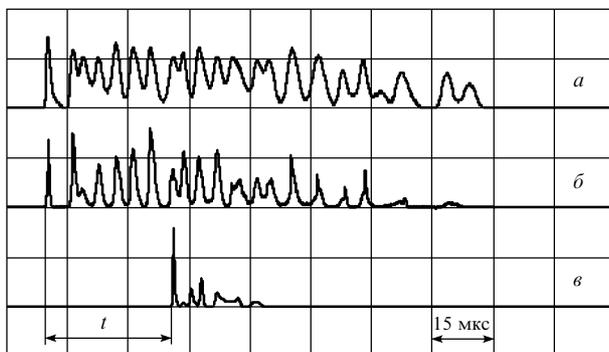


Рис.1. Схема экспериментальной установки.

в процессе роста [12]. Накачка $\text{Cr}^{2+}:\text{ZnSe}$ -лазера осуществлялась $\text{Co}:\text{MgF}_2$ -лазером с длиной волны 1.95 мкм. Использовалась продольная схема накачки, в которой пучок $\text{Co}:\text{MgF}_2$ -лазера фокусировался линзой Л1 и проходил через зеркало З2. Диаметр пятна накачки в центре кристалла $\text{Cr}^{2+}:\text{ZnSe}$ равнялся 0.6 мм. Излучение накачки на входе в кристалл $\text{Cr}^{2+}:\text{ZnSe}$ имело энергию 7 мДж, выходная энергия $\text{Cr}^{2+}:\text{ZnSe}$ -лазера составляла приблизительно 350 мкДж, центр спектра генерации лежал вблизи длины волны 2.44 мкм.

Временной ход импульсов накачки и генерации $\text{Cr}^{2+}:\text{ZnSe}$ -лазера регистрировался с помощью фотодиодов ФД1 и ФД2 (фотодиоды PD36 на базе структуры $\text{InAsSbP}/\text{InAs}$). Типичные формы импульсов накачки и генерации представлены на рис.2 (осциллограммы *a* и *б* соответственно).

Из-за отсутствия в нашем распоряжении многоканального приемника ИК диапазона мы не могли регистрировать непосредственно спектр ИК излучения $\text{Cr}^{2+}:\text{ZnSe}$ -лазера. Поэтому широкополосное ИК излучение $\text{Cr}^{2+}:\text{ZnSe}$ -лазера предварительно преобразовывалось в видимое излучение (740 нм), спектр которого затем записывался с помощью дифракционного спектрографа с ПЗС-линейкой, связанной с персональным компьютером. Нелинейно-оптическое преобразование ИК излучения в видимый диапазон осуществлялось в кристалле LiNbO_3 при смешении с монохроматическим излучением $\text{Nd}:\text{YAG}$ -лазера с длиной волны 1.064 мкм и шириной спектра 0.02 см^{-1} . Выходная энергия $\text{Nd}:\text{YAG}$ -лазера составляла 5 мДж. Для обеспечения 90° -ного син-

Рис.2. Осциллограммы импульсов накачки (*a*), генерации $\text{Cr}^{2+}:\text{ZnSe}$ -лазера (*б*) и узкополосного $\text{Nd}:\text{YAG}$ -лазера (*в*); *t* – время, отсчитываемое от переднего фронта первого пика генерации.

хронизма кристалл LiNbO_3 нагревался до температуры приблизительно 500°C с помощью печи. Фокусировка и совмещение пучков $\text{Cr}^{2+}:\text{ZnSe}$ - и $\text{Nd}:\text{YAG}$ -лазеров внутри кристалла ниобата лития осуществлялись линзами Л2 и Л3 и дихроичным зеркалом ДЗ, которое пропускало излучение в окрестности длины волны 2.44 мкм и полностью отражало свет на длине волны 1.064 мкм. Преобразованное излучение выделялось стеклянным светофильтром СФ и фокусировалось линзой Л4 на входную щель дифракционного спектрографа, имеющего теоретическую разрешающую способность 0.04 см^{-1} .

Благодаря малой длительности генерации $\text{Nd}:\text{YAG}$ -лазера по сравнению с длительностью генерации $\text{Cr}^{2+}:\text{ZnSe}$ -лазера преобразование частоты в видимый диапазон также позволяло осуществлять запись спектров с временным разрешением. Форма импульса $\text{Nd}:\text{YAG}$ -лазера регистрировалась с помощью фотодиода ФД3 (лавинный фотодиод ЛФД-2А). Типичная осциллограмма показана на рис.2, *в*). Полная длительность импульса $\text{Nd}:\text{YAG}$ -лазера составляла примерно 15 мкс, однако в первом пике длительностью около 1 мкс содержалось приблизительно 50 % лазерной энергии. Управляя с помощью схемы синхронизации задержкой импульса $\text{Nd}:\text{YAG}$ -лазера относительно момента запуска импульса накачки, можно было записывать спектральное распределение излучения $\text{Cr}^{2+}:\text{ZnSe}$ -лазера в любой момент времени *t* относительно переднего фронта генерации и, следовательно, наблюдать развитие спектров внутрирезонаторного поглощения во времени.

3. Результаты экспериментов и их обсуждение

В настоящей работе исследовались спектры генерации широкополосного $\text{Cr}^{2+}:\text{ZnSe}$ -лазера, резонатор которого был заполнен атмосферным воздухом. Спектры были записаны в диапазоне 2.41–2.46 мкм для длительностей генерации 0–100 мкс. Спектры, полученные для $t = 0$ (первый пик генерации), 10, 20, 40 и 60 мкс, представлены на рис.3, *a*. Для каждого значения времени приведены результаты, полученные при суммировании спектров излучения 100 импульсов лазера. Разброс значений *t* при усреднении составлял ± 3 мкс. Наблюдающееся поглощение обусловлено парами воды, парциальное давление которых при проведении измерений составляло 5 Тор.

Если резонатор лазера полностью заполнен поглощающим веществом (как это имело место в нашей установке), то эффективная длина поглощения L_{eff} при использовании метода ВРЛС равна длине пути, прошедого светом за время генерации t_g , т. е. $L_{\text{eff}} = ct_g$. При этом время генерации отсчитывается от момента достижения инверсии порогового значения. В твердотельных лазерах, в которых время жизни верхнего лазерного уровня обычно больше времени жизни фотона в резонаторе, появлению первого пика излучения предшествует некоторое время развития генерации t_0 , поэтому под временем генерации следует понимать $t_g = t_0 + t$, где *t* отсчитывается от переднего фронта первого пика генерации (см. рис.2). Благодаря этому внутрирезонаторное поглощение проявляется уже в спектре излучения первого пика.

На рис.3, *б* представлены модельные спектры поглощения атмосферы, рассчитанные для различных погло-

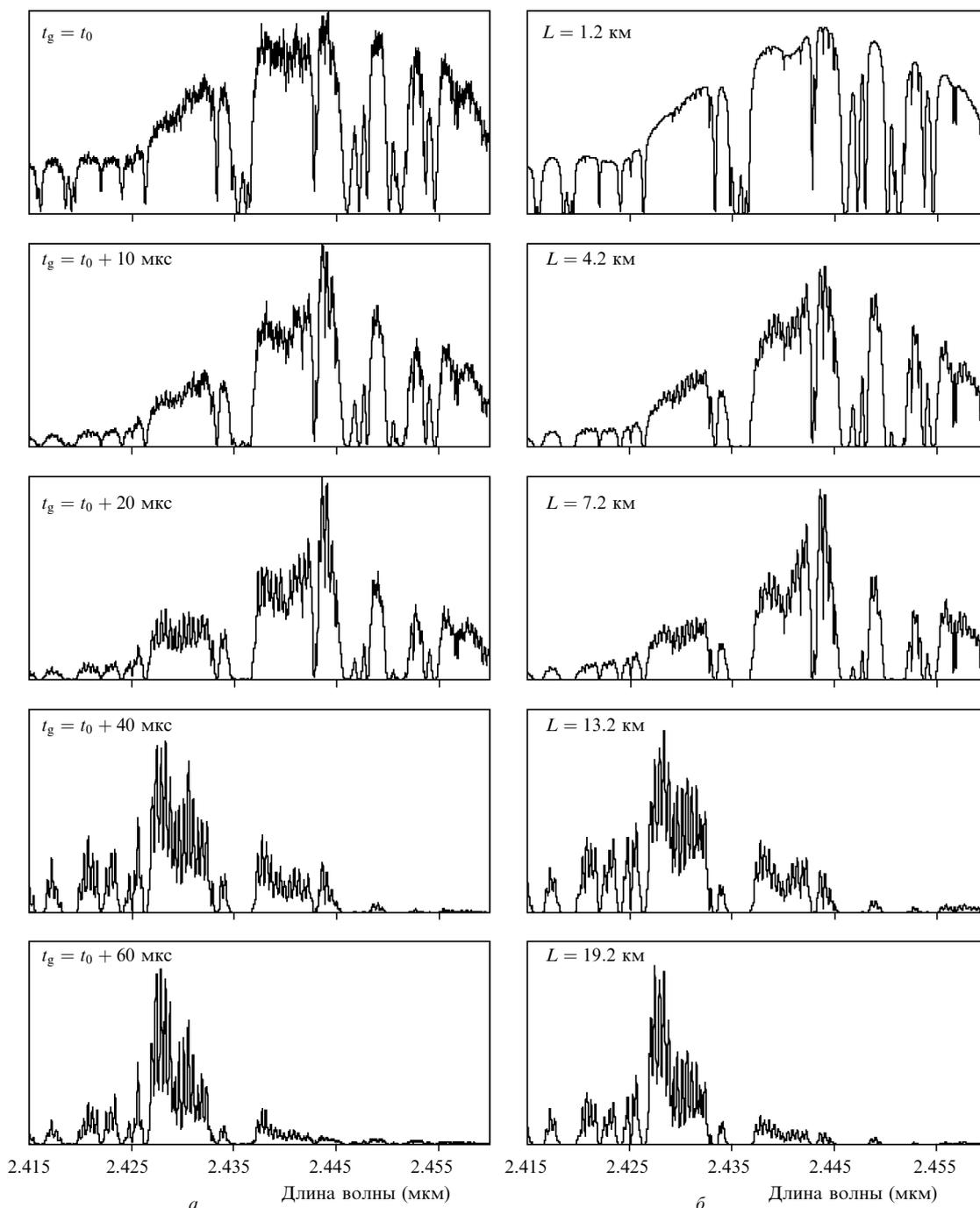


Рис.3. Внутрирезонаторные спектры поглощения атмосферного воздуха, записанные в различные моменты генерации $\text{Cr}^{2+} : \text{ZnSe}$ -лазера (а), и расчетные спектры поглощения атмосферного воздуха, полученные для парциального давления паров воды 5 Тор при разных длинах поглощения слоя с учетом огибающей экспериментального спектра генерации $\text{Cr}^{2+} : \text{ZnSe}$ -лазера (б).

щающих длин на основе базы данных HITRAN [13] с учетом огибающей спектра генерации лазера. При моделировании предполагалось, что длина поглощения $L = c(\Delta t + t)$, где значение $\Delta t = 4$ мкс было выбрано для достижения наилучшего совпадения экспериментального и расчетного спектров при $t = 0$. В наших экспериментах задержка переднего фронта импульса $\text{Cr}^{2+} : \text{ZnSe}$ -лазера относительно переднего фронта импульса накачки $\text{Co} : \text{MgF}_2$ -лазера составляла примерно 1 мкс, поэтому время развития генерации t_0 не могло превышать это значение. По-видимому, величина $\Delta t = 4$ мкс обусловлена не только временем развития генерации t_0 , но и вышеуказанным разбросом времени задержки t при

усреднении спектров, а также большой полной длительностью (15 мкс) импульса $\text{Nd} : \text{YAG}$ -лазера.

Наблюдающееся хорошее качественное соответствие между экспериментальными и расчетными результатами позволяет сделать вывод о том, что в диапазоне исследованных длительностей генерации 0–100 мкс наблюдается рост чувствительности спектра $\text{Cr}^{2+} : \text{ZnSe}$ -лазера к внутрирезонаторному поглощению. Однако количественные исследования линейности этого роста в условиях данной работы не представляются возможными по двум причинам. Во-первых, наблюдающиеся линии поглощения сильно перенасыщены. Поэтому в дальнейшем предполагается провести измерения динамики внутрирезона-

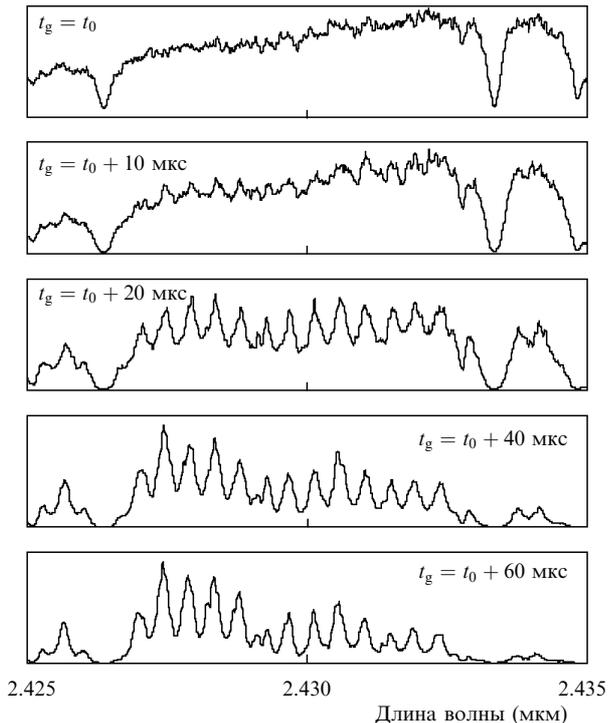


Рис.4. Модуляция спектра генерации $\text{Cr}^{2+} : \text{ZnSe}$ -лазера в результате интерференционных явлений при отражении излучения на поверхностях активного элемента в различные моменты генерации.

торного поглощения при более низких давлениях паров воды, для чего необходимо герметизировать резонатор лазера. Во-вторых, в спектре генерации лазера наблюдается сильная модуляция спектра, обусловленная, по нашему мнению, интерференционными явлениями при распространении лазерного излучения через активный элемент, представляющий собой эталон Фабри–Перо (период модуляции спектра 0.76 см^{-1} совпадает с постоянной эталона, образованного поверхностями кристалла $\text{Cr}^{2+} : \text{ZnSe}$). На рис.4 для наглядности представлен растянутый по горизонтали участок спектра генерации, на котором эта модуляция отчетливо проявляется. Нарастание амплитуды модуляции со временем также качественно подтверждает рост чувствительности с увеличением длительности генерации. Однако для работы с более слабыми спектрами поглощения эту модуляцию необходимо устранить, для чего, вероятно, потребуется использовать активный элемент большей толщины или

клиновидной формы, что позволит исключить интерференцию основного лазерного пучка с вторичными пучками, отраженными от граней активного элемента.

4. Заключение

В настоящей работе впервые показано, что $\text{Cr}^{2+} : \text{ZnSe}$ -лазер может с успехом применяться в методе внутрирезонаторной лазерной спектроскопии ИК диапазона. Рост чувствительности спектра генерации к внутрирезонаторному поглощению наблюдался при увеличении длительности генерации по меньшей мере до 100 мкс, что эквивалентно эффективной поглощающей длине 30 км. Тем самым показано, что $\text{Cr}^{2+} : \text{ZnSe}$ -лазер перспективен для разработки компактного и недорогого ВРЛС-спектрометра для ИК диапазона.

Работа выполнена при частичной финансовой поддержке Американского фонда гражданских исследований и развития (грант CRDF BRHE REC-011) и Программы фундаментальных исследований РАН «Новые материалы и структуры».

1. Werle P., Popov A. *Appl. Opt.*, **38**, 1494 (1999).
2. Sigrist M.W., Bohren M.W., Calasso I.G., Nagele M., Romann M., Seiter M. *Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng.*, **4063**, 17 (2000).
3. Berden G., Peeters R., Meijer G. *Int. Rev. Phys. Chem.*, **19**, 565 (2000).
4. Пахомычева Л.А., Свириденков Э.А., Сучков А.Ф., Титова Л.В., Чурилов С.С. *Письма в ЖЭТФ*, **12**, 60 (1970).
5. Баев В.М., Дубов В.П., Киреев А.Н., Свириденков Э.А., Топтыгин Д.Д., Ющук О.И. *Квантовая электроника*, **13**, 1708 (1986).
6. Frolov M.P., Podmar'kov Yu.P. *Opt. Commun.*, **155**, 313 (1998).
7. Подмарьков Ю.П., Распопов Н.А., Савченко А.Н., Фролов М.П. *Квантовая электроника*, **28**, 186 (1999).
8. DeLoach L.D., Page R.H., Wilke G.D., Payne S.A., Krupke W.F. *IEEE J. Quantum Electron.*, **32**, 885 (1996).
9. Page R.H., Schaffers K.I., DeLoach L.D., Wilke G.D., Patel F.D., Tassano J.B., Payne S.A., Krupke W.F., Chen K.-T., Burger A. *IEEE J. Quantum Electron.*, **33**, 609 (1997).
10. McKay J., Schepler K., Catella G.C. *Opt. Lett.*, **24**, 1575 (1999).
11. Hommerich U., Wu X., Davis V.R., Trivedi S.B., Graszka K., Chen R.J., Kutcher S. *Opt. Lett.*, **22**, 1180 (1997).
12. Козловский В.И., Коростелин Ю.В., Ландман А.И., Подмарьков Ю.П., Фролов М.П. *Квантовая электроника*, **33**, 408 (2003).
13. Rothman L.S., Rinsland C.P., Goldman A., Massie S.T., Edwards D.P., Flaud J.-M., Perrin A., Camy-Peyrot C., Dana V., Mandin J.-Y., Schroeder J., McCann A., Gamache R.R., Wattson R.B., Yoshino K., Chance K.V., Jucks K.W., Brown L.R., Nemtchinov V., Varanasi P. The HITRAN molecular spectroscopic database and HAWKS (HITRAN Atmospheric Workstation) (1996 Edition); *J. Quantum Spectrosc. Radiat. Transfer*, **60**, 665 (1998).