

## АКТИВНЫЕ СРЕДЫ ЛАЗЕРОВ

# He–Ar-смесь высокого давления, возбуждаемая электронным пучком, как потенциальная активная среда лазера с оптической накачкой

Д.А.Заярный, А.Е.Дракин, А.А.Ионин, А.Ю.Льдов,  
Д.В.Синицын, Н.Н.Устиновский, И.В.Холин

*Исследована возможность создания лазера с оптической накачкой метастабильных уровней ArI, наработанных релятивистским электронным пучком в газовых He–Ar-смесях высокого давления. Показано, что высокая населенность  $1s_5$ -уровня атома аргона, широкая ( $\sim 10$  нм) абсорбционная спектральная линия и большое время жизни позволяют получить после действия электронного пучка оптимальные условия для генерации излучения в рамках классической трехуровневой лазерной схемы. Измерены константы скоростей двух- и трехчастичных процессов столкновительной релаксации низколежащих  $4s$ -уровней возбужденного атома аргона в He–Ar-смесях в диапазоне давлений 4 – 0.75 атм.*

**Ключевые слова:** электронно-пучковый лазер, лазер на атомных переходах инертных газов, диодная накачка.

### 1. Введение

В последние 15 лет существенное развитие получили лазерные системы на парах щелочных металлов (DPAL) с накачкой полупроводниковыми лазерами, на которых получена мощная одноапертурная генерация с высоким качеством оптического пучка [1, 2]. В то же время высокая химическая агрессивность такой лазерной среды приводит к быстрому повреждению оптических элементов лазерной кюветы, а также к образованию рассеивающих лазерное излучение гидридов (лазерный снег) в реакциях с углеводородами, которые используются как спин-орбитальный релаксационный агент в плотных смесях атмосферного давления [3]. Переход к схеме с использованием метастабильных состояний атомов инертных газов, формируемых электрическим разрядом постоянного тока (DC) или высокочастотным разрядом (RF) газовых смесей благородных газов (DPRGL) при давлении ниже 1 атм, позволил получить химически инертную активную среду при сохранении столь же высоких удельных лазерных характеристик [3–6]. Наиболее перспективной для данного типа лазеров оказалась He–Ar-смесь, в которой используется накачка метастабильного уровня  $4s[3/2]_2^o$  (в обозначениях Пашена –  $1s_5$ ) возбужденного атома аргона на оптически связанный  $4p[5/2]_3$ -уровень излучением полупроводникового лазера с длиной волны генерации, соответствующей длине волны 811.5311 нм перехода  $4p[5/2]_3 - 4s[3/2]_2^o$  (рис.1). Быстрая столкновительная релаксация передает возбуждение на  $4p[1/2]_1$ -уровень ArI, создавая инверсию населенностей и приводя к лазерной генерации на переходе  $4p[1/2]_1 - 4s[3/2]_2^o$  с длиной волны 912.2967 нм; таким образом реализуется классическая трехуровневая

модель лазера. Как известно, она требует высоких уровней оптической накачки и населенности метастабильного уровня  $4s[3/2]_2^o$ , оцениваемой величиной не менее  $10^{13}$  см<sup>-3</sup> (см. работу [7]).

Существует ряд фундаментальных ограничений, снижающих возможности построения мощных DPRGL-

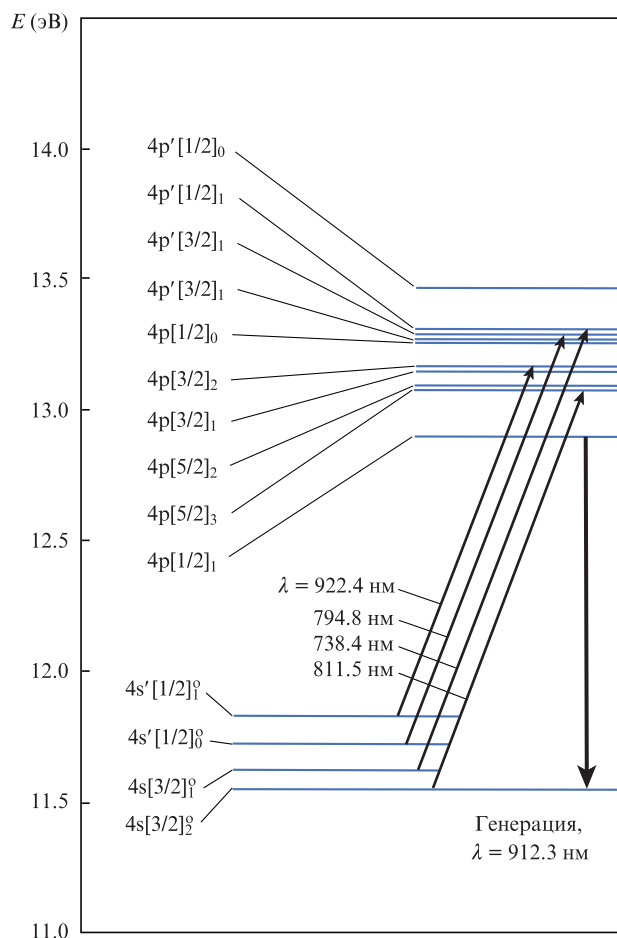


Рис.1. Схема низколежащих возбужденных уровней ArI.

Д.А.Заярный, А.Е.Дракин, А.А.Ионин, А.Ю.Льдов, Д.В.Синицын,  
Н.Н.Устиновский, И.В.Холин. Физический институт им. П.Н.Ле-  
бедева РАН, Россия, 119991 Москва, Ленинский просп., 53;  
e-mail: dzayarny@sci.lebedev.ru

Поступила в редакцию 1 сентября 2018 г., после доработки –  
1 октября 2018 г.

лазеров, связанных с физикой электрического разряда в плотных газовых средах. Эти проблемы могут быть решены при использовании квазирелятивистского электронного пучка для накачки лазерной газовой смеси. Возможности масштабирования активного объема до десятков или даже сотен литров и увеличения давления газовой смеси до нескольких атмосфер при сохранении пространственной однородности электронной накачки делают электронный пучок весьма перспективным для возбуждения лазеров данного типа. В то же время оказалось, что ряд плазмохимических процессов, протекающих в плотной среде He–Ar-лазера под действием высокоэнергетического электронного пучка, изучен недостаточно. В первую очередь требуется уточнение констант скоростей процессов, ответственных за расселение нижних s-уровней атома аргона. Если константы скоростей двух- и трехчастичных процессов для метастабильного уровня  $4s[3/2]_2^0$  были получены нами в работе [8], то для остальных уровней константы либо отсутствуют, либо требуют уточнения. Стоит также отметить, что для построения тех либо иных моделей DPRGL-лазеров на смеси He–Ar многие авторы [3–7, 9] используют данные из работы [10], где при исследовании ВУФ излучения в послесвечении высоковольтного электрического разряда в чистом аргоне при низком давлении ( $\sim 25$  Тор) были получены константы скоростей двух- и трехчастичных столкновительных процессов при комнатной температуре, составившие  $(13.8 \pm 1.4) \times 10^{-16} \text{ см}^3 \cdot \text{с}^{-1}$  и  $(1.71 \pm 0.02) \times 10^{-32} \text{ см}^6 \cdot \text{с}^{-1}$ . При этом в самой работе [10] приведены сводные данные по этим константам с использованием абсорбционных методов наблюдения, а также других способов возбуждения исследуемых газов, и эти данные существенно отличаются от приведенных выше значений. В той же работе подчеркивается, что для высоких давлений газов (более 100 Тор) используемые в работе приближения для определения констант скоростей не работают.

Особые сложности при моделировании вызывают процессы столкновительной релаксации с одновременным участием атомов рабочего газа (аргон) и буферного газа (гелий), т. к. экспериментальные данные по константам скоростей таких процессов в литературе отсутствуют и авторами обычно используется расчетная оценка, соответствующая половине константы в чистом аргоне [5]. Однако простейшие расчеты показывают, что при таких значениях констант для смеси He : Ar = 50 : 1 при давлении 4 атм время жизни метастабильного уровня  $4s[3/2]_2^0$  не превышает 0.5 мкс, и это явно противоречит наблюдаемому нами в экспериментах длинному, в несколько микросекунд, экспоненциальному хвосту абсорбционного импульса на длине волны 912.2967 нм [8].

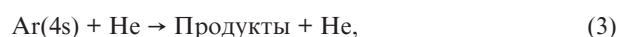
Еще одним существенным отличием предлагаемой нами лазерной схемы с использованием возбуждения He–Ar-смеси электронным пучком от DPRGL является формирование инверсии и осуществление лазерной генерации в свечении после электронного импульса, поскольку формируемая под действием высоковольтного электронного пучка накачки высокая плотность вторичных горячих электронов приводит к эффективному перемещению возбужденных p- и s-уровней атома аргона электронным ударом, ухудшая условия формирования инверсии во время накачки, а большое время жизни метастабильного уровня, существенно превышающее время жизни вторичных электронов [8], позволяет реализовывать под действием оптической накачки с длиной волны

811.5311 нм инверсию населенности на этих лазерных уровнях в послесвечении, по прекращению действия электронного пучка.

Цель настоящей работы – оценка возможности применения плотных He–Ar-смесей, возбужденных релятивистским электронным пучком, как активной среды для лазеров с оптической накачкой лазерными диодами.

## 2. Эксперимент

Эксперименты проводились на импульсной лазерной электроионизационной установке «Тандем». Накачка исследуемой газовой смеси осуществлялась ленточным электронным пучком сечением  $100 \times 5$  см с энергией электронов на входе в активный объем 150 кэВ, плотностью тока  $1.5 \text{ А/см}^2$  и длительностью импульса по основанию  $\sim 3.5$  мкс. Более подробно параметры установки и методика экспериментов описаны нами ранее в работе [8]. Для определения констант скоростей двух- и трехчастичных столкновительных процессов



ответственных за расселение после воздействия электронного пучка  $1s_4$ -,  $1s_3$ - и  $1s_2$ -уровней атома аргона в плотных, с общим давлением в несколько атмосфер He–Ar-смесях, методом абсорбционного зондирования исследовались временные зависимости коэффициентов поглощения на связанных с рассматриваемыми уровнями оптических  $4p - 4s$ -переходах. Данные об этих переходах и соответствующих им длинах волн приведены в табл.1 и на рис.1. Просвечивание возбужденных газовых смесей осуществлялось импульсным широкополосным источником света ИСИ-1, а выделение требуемой оптической линии – светосильным монохроматором МДР-2. С помощью высокочувствительных помехозащищенных полупроводниковых фотоприемников с временным разрешением не хуже 100 нс и двухканального цифрового осциллографа DSO-2102 осуществлялась одновременная регистрация излучения на входе и выходе активного объема, накачиваемого электронным пучком.

Как и в нашей предыдущей работе, абсорбционные импульсы (на длинах волн из табл.1) для He–Ar-смесей в диапазоне давлений 4.0 – 0.75 атм при соотношении компонентов 50 : 1, 100 : 1 и 200 : 1 характеризовались длинными микросекундными экспоненциальными хвостами. Численная обработка методом наименьших квадратов массива экспериментальных данных при различных давлениях и соотношениях газовых компонентов для каждого из исследуемых  $4s$ -уровней позволяет одновременно вычислять константы скоростей процессов (1) – (3) в соответствии с методикой, подробно изложенной в работе

Табл.1. Исследуемые уровни ArI и соответствующие им оптические переходы и длины волн.

| Уровень | Переход в ArI             | Длина волны (нм) |
|---------|---------------------------|------------------|
| $1s_4$  | $4p[3/2]_2 - 4s[3/2]_1^0$ | 738.4            |
| $1s_3$  | $4p[3/2]_1 - 4s[1/2]_1^0$ | 794.8            |
| $1s_2$  | $4p[3/2]_2 - 4s[1/2]_1^0$ | 922.4            |

Табл.2. Константы скоростей процессов столкновительного тушения 4s-уровней ArI.

| Реакция | Константы скоростей для метастабильных уровней            |   | Константы скоростей для резонансных уровней           |   |
|---------|---|---|---|---|
|         | 4s[3/2] <sub>2</sub>                                      | 4s'[1/2] <sub>2</sub>                                 | 4s[3/2] <sub>1</sub>                                  | 4s'[1/2] <sub>1</sub>                                 |
| (1)     | $(3.6 \pm 0.4) \times 10^{-33} \text{ см}^6/\text{с}$ [8] | $(4.9 \pm 0.5) \times 10^{-33} \text{ см}^6/\text{с}$ | $(4.3 \pm 0.9) \times 10^{-33} \text{ см}^6/\text{с}$ | $(7.0 \pm 0.7) \times 10^{-33} \text{ см}^6/\text{с}$ |
| (2)     | $(4.4 \pm 0.9) \times 10^{-36} \text{ см}^6/\text{с}$ [8] | $(5.6 \pm 1.0) \times 10^{-36} \text{ см}^6/\text{с}$ | $(5.4 \pm 1.1) \times 10^{-36} \text{ см}^6/\text{с}$ | $< 1.0 \times 10^{-35} \text{ см}^6/\text{с}$         |
| (3)     | $(2.4 \pm 0.3) \times 10^{-15} \text{ см}^3/\text{с}$ [8] | $(3.9 \pm 0.4) \times 10^{-15} \text{ см}^3/\text{с}$ | $(3.5 \pm 0.7) \times 10^{-15} \text{ см}^3/\text{с}$ | $(6.0 \pm 0.6) \times 10^{-15} \text{ см}^3/\text{с}$ |

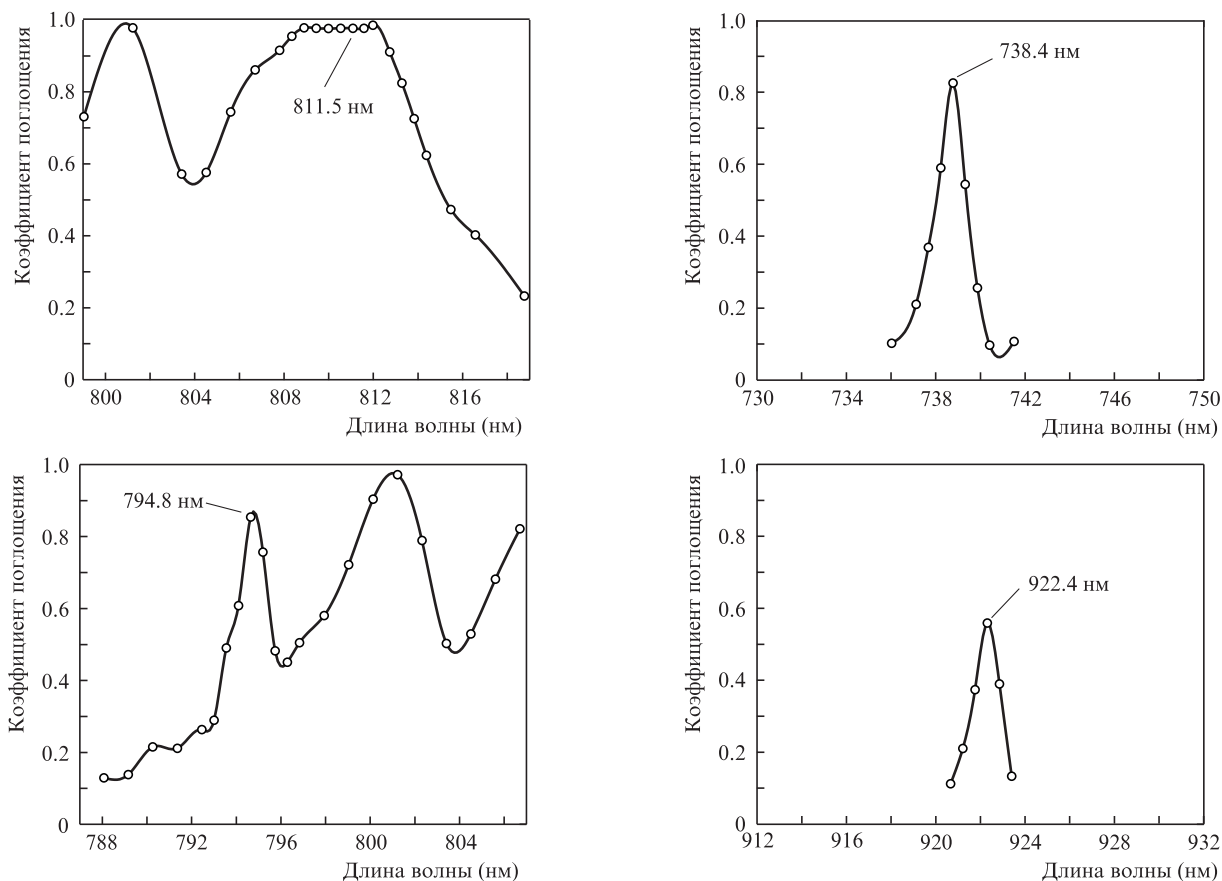
[8]. В результате были получены значения этих констант, приведенные в обобщенной табл.2 для всех низколежащих 4s-уровней ArI.

Данные табл.2 показывают, что все низколежащие 4s-уровни ArI в исследуемом диапазоне давлений He–Ar-смесей и соотношения их компонентов являются долгоживущими; при этом с ростом энергии уровня наблюдается незначительное увеличение констант скоростей столкновительной релаксации по всем процессам (1) – (3). Таким образом, можно сделать вывод, что лазерная генерация на оптических переходах, оканчивающихся на любом из низколежащих 4s-уровней ArI, возможна либо в самоограниченном режиме, либо при наличии дополнительных каналов расселения этого уровня.

Существенно меньшая константа скорости для процесса (2), чем для процесса (1), говорит о незначительной роли процесса (2) в расселении нижних 4s-уровней ArI в смесях с высоким содержанием рабочего газа, характерных для лазерных He–Ar-смесей. Однако он может играть весьма важную роль, связанную со столкновительным уширением оптического перехода  $4p[5/2]_3 - 4s[3/2]_2$  на длине волны 811.5311 нм. Действительно, стоит полагать, что в наших абсорбционных экспериментах мы

наблюдаем в качестве процесса (2) сумму двух процессов: сравнимого по скорости с процессом (1) прямого процесса трехчастичной столкновительной релаксации нижнего метастабильного 4s-уровня с образованием гетероядерного эксимера  $\text{HeAr}^*$ , обладающего очень малой ( $\sim 0.01$  эВ) энергией связи (это оценку можно сделать исходя из табл.1 работы [9]), и столь же быстрого обратного процесса. Вследствие этого спектральное ударное уширение данного уровня будет квадратично зависеть от давления и существенно превышать стандартные оценки уширения давлением. Чтобы удостовериться в этом, мы измерили коэффициент поглощения  $\alpha$  на всей длине активного объема вблизи длин волн исследуемых нами переходов, а также вблизи длины волны перехода  $4p[5/2]_3 - 4s[3/2]_2$ , и получили зависимости, отображенные на рис.2. Зависимости были построены для смеси He:Ar = 100:1 при давлении 3.0 атм, при этом максимум поглощения наблюдался сразу по окончании действия электронного пучка.

Кроме того, нами была измерена аппаратная функция монохроматора с использованием He–Ne-лазера. В той же оптической схеме и при тех же размерах входной и выходной щелей, а также при одинаковом заполнении излучением дифракционных решеток (600 штрих/мм) моно-

Рис.2. Спектральные зависимости коэффициента поглощения  $\alpha$  вблизи ряда исследуемых линий с длинами волн 811.5, 738.4, 794.8 и 922.4 нм.

хроматора МДР-2 измеренная полуширина спектра He–Ne-лазера, т. е. аппаратной функции, составила 1.3 нм. Полуширины для спектральных линий, оканчивающихся на уровнях  $4s[3/2]_1^o$ ,  $4s'[1/2]_0^o$  и  $4s'[1/2]_1^o$ , оказались достаточно близкими к этому значению, хотя и несколько превышали его, а вот для линии 811.5311 нм и, соответственно, уровня  $4s[3/2]_2^o$  она оказалась почти на порядок шире. Подобная картина наблюдалась нами и в работе [8] для линии 912.2967 нм, оканчивающейся на том же нижнем метастабильном уровне. Единственной возможной причиной такого различия в ширинах линий может быть то, что уровень  $4s[3/2]_2^o$  является основным заселенным возбужденным уровнем AgI после воздействия электронного пучка с плотностью населенности  $10^{13} - 10^{14} \text{ см}^{-3}$  при наших экспериментальных условиях, и его населенность существенно превышает населенность остальных уровней. Соответственно прямой процесс (2) и обратный ему процесс наиболее интенсивно идут именно для этого уровня, приводя к его дополнительному спектральному уширению.

Широкая линия поглощения AgI на длине волны 811.5311 нм перекрывает спектр генерации серийных мощных полупроводниковых лазеров с длиной волны излучения в диапазоне 808 – 810 нм, что позволяет использовать их для эффективной оптической накачки He–Ag-лазера. Для проверки этого предположения мы использовали пятимиллиметровую линейку из десяти непрерывных лазерных диодов с суммарной мощностью 20 Вт и шириной спектра генерации  $\sim 2$  нм по полувысоте. Подбирая температуру охлаждающей жидкости в системе охлаждения этой линейки, можно было настраивать длину волны генерации на переход  $4p[5/2]_3 - 4s[3/2]_2^o$ . Излучение линейки фокусировалось в пятно  $3 \times 1$  мм в центре активного объема, что обеспечивало плотность мощности излучения в фокусе на уровне  $670 \text{ Вт/см}^2$  по полувысоте (согласно оценке на основе данных работы [9], это ниже порога получения генерации в DPRGL-лазерах). Кроме того, с целью упрощения спектральных измерений была выбрана оптическая схема с поперечной накачкой излучением полупроводникового лазера активной He–Ag-среды. Поскольку область высокой плотности мощности оптической накачки в этом случае мала по сравнению с объемом нашей измерительной камеры (ее активная длина составляла 100 см, апертура – 5 см), то для уверенной регистрации влияния оптической накачки на спектральные характеристики He–Ag-смеси высокого давления, возбуждаемой электронным пучком, была изготовлена новая измерительная камера с уменьшенной до 1 см активной длиной и световой апертурой 1.5 см (рис.3). Камера располагалась напротив выходного окна электронного пучка ускорителя установки «Тандем», и пучок проходил через два слоя титановой фольги толщиной 25 мкм и сантиметровой слой воздуха, прежде чем попасть в активный объем камеры. Излучение линейки полупроводниковых лазеров вводилось через расположенное снизу камеры окно поперек ее оптической оси. На торцах камеры устанавливались либо глухое плоское зеркало и просветленная на 912 нм стеклянная подложка, либо глухое и полупрозрачное зеркала, образуя в этом случае 50%-ный плоскопараллельный резонатор.

С помощью шестиметрового жгута кварцевого оптоволокна диаметром 5 мм излучение возбужденной электронным пучком фотолюминесценции активной He–Ag-смеси передавалось на входную щель монохроматора МДР-2, настроенного на длину волны 912.3 нм, и реги-

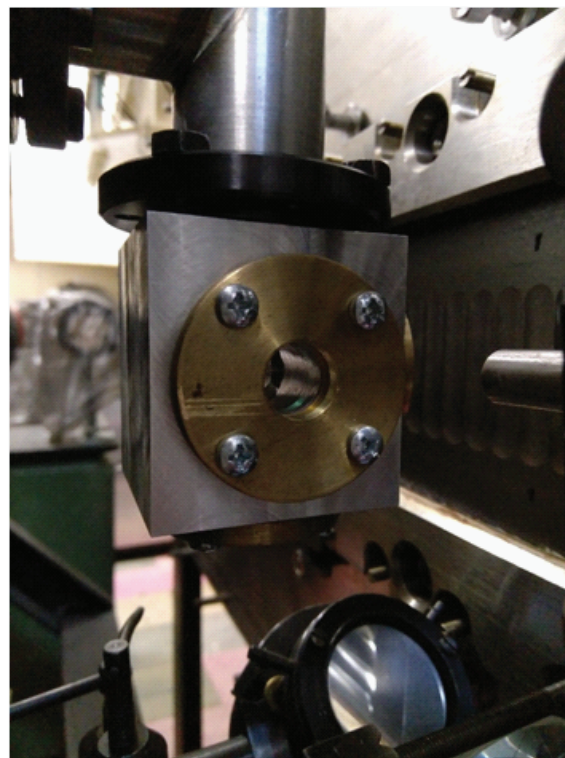


Рис.3. Камера для исследования фотолюминесценции при накачке излучением линейки полупроводниковых лазеров He–Ag-смеси высокого давления в послесвечении электронного пучка.

стрировалось кремниевым фотодиодом и цифровым осциллографом на выходной щели монохроматора, как и ранее в наших абсорбционных измерениях. Фотолюминесценция наблюдалась при накачке электронным пучком как при наличии непрерывной оптической накачки, так и без нее.

Наиболее выраженными были изменения импульса фотолюминесценции для смеси с достаточно высоким содержанием рабочего газа (He: Ag = 50: 1) при максимальном в наших экспериментальных условиях давлении газовой смеси 4 атм (рис.4). Включение оптической накачки приводило к значительному росту амплитуды и длительности фотолюминесценции, что можно объяснить ростом населенности уровня  $4p[1/2]_1$  в результате быстрой столкновительной релаксации уровня  $4p[5/2]_3$ , накачиваемого излучением полупроводникового лазера, при одновременном прекращении паразитного перемешивания 4p- и 4s-уровней AgI вторичными электронами в возбужденной релятивистским электронным пучком газовой He–Ag-смеси. Применение полупрозрачного плоского резонатора существенно увеличивало интенсивность излучения активной среды при одновременной электронно-пучковой и оптической накачке, что свидетельствует о наблюдении усиленного спонтанного излучения. Малая длина активной среды, а также недостаточная плотность оптической накачки не позволили получить лазерную генерацию в наших экспериментах.

В то же время была продемонстрирована возможность эффективного оптического возбуждения уровня  $4p[1/2]_1$  AgI излучением стандартной линейки лазерных диодов без применения специальных способов сужения и точной настройки в оптический переход их линии генерации, что позволяет надеяться на использование в исследуемом нами типе лазеров высокого давления с электронно-

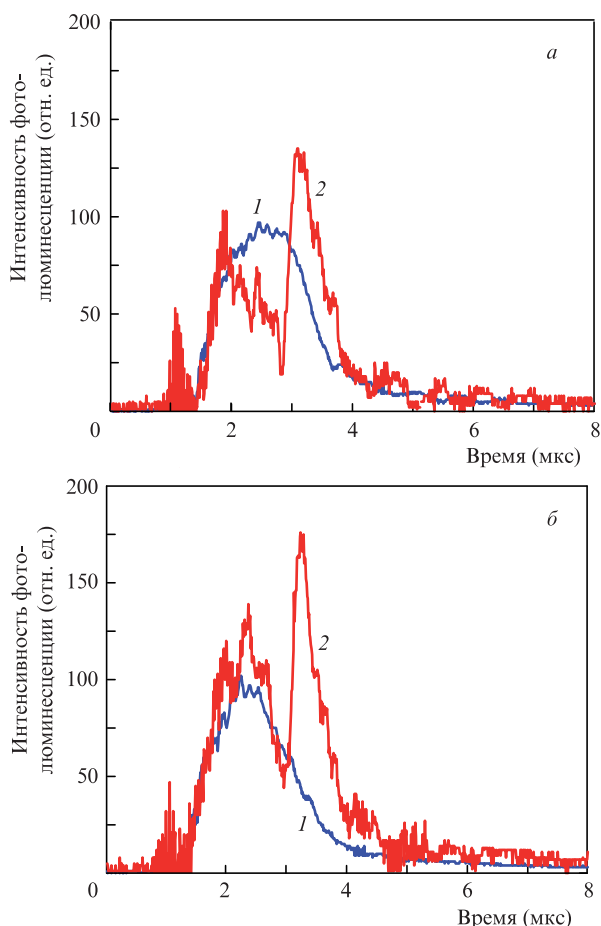


Рис.4. Импульс фотолюминесценции на длине волны 912.3 нм: *a* – без резонатора (с одним глухим зеркалом); *б* – с полупрозрачным плоским резонатором (1 – накачка только электронным пучком, 2 – комбинированная электронно-оптическая накачка). Длительность электронного импульса накачки в активном объеме камеры  $\sim 2$  мкс.

пучковой накачкой мощных промышленных сборок полупроводниковых лазеров киловаттной и большей мощности, широко применяемых в настоящее время для накачки твердотельных лазеров.

### 3. Заключение

Проведенные нами исследования возможности применения плотных He–Ag-смесей, возбужденных релятивистским электронным пучком, в качестве активной среды для лазеров с оптической накачкой дали следующие результаты:

– Показано, что все низколежащие 4s-уровни AgI являются долгоживущими (время жизни составляет от единиц до десятков микросекунд) в исследуемом диапазоне давлений при соотношении компонентов буферного и рабочего газов от 50:1 до 200:1. Определены ранее неизвестные константы скоростей двух- и трехчастичных процессов (1) – (3) столкновительной релаксации.

– Для исследуемых газовых смесей обнаружена anomalно широкая линия поглощения излучения ( $\sim 10$  нм по полувысоте) вблизи линии 811.5311 нм, соответствующей переходу  $4p[5/2]_3 - 4s[3/2]_0^o$  AgI. Это открывает возможность эффективной оптической накачки исследуемых нами активных сред излучением широкополосных, неоптимизированных по длине волны генерации мощных промышленных сборок полупроводниковых лазерных диодов.

– Экспериментально, по изменению сигнала фотолюминесценции на длине волны 912.3 нм, продемонстрирована оптическая накачка возбужденной электронным пучком плотной He–Ag-смеси линейкой лазерных диодов с длиной волны генерации 811.5 нм. Показано, что наиболее оптимальные условия фотолюминесценции и усиления для такой лазерной смеси на длине волны 912.3 нм реализуются после воздействия электронного пучка. Увеличение длины области и плотности оптической накачки позволит достичь лазерной генерации на длине волны 912.3 нм в лазере на плотной He–Ag-смеси с электронно-пучковой оптической накачкой.

Авторы выражают благодарность Г.Микаэлян за предоставление линейки лазерных диодов.

Работа выполнена при поддержке РФФИ (грант № 17-02-00241).

1. Krupke W.F. *Proc. SPIE*, **7005**, 700575 (2008).
2. Богачев А.В., Гаранин С.Г., Дудов А.М., Ерошенко В.А., Куликов С.М., Микаэлян Г.Т., Панарин В.А., Паутов В.О., Рус А.В., Сухарев С.А. *Квантовая электроника*, **42** (2), 95 (2012) [*Quantum Electron.*, **42** (2), 95 (2012)].
3. Han J., Glebov L., Venus G., Heaven M. *Opt. Lett.*, **38** (24), 5458 (2013).
4. Han J., Heaven M. *Opt. Lett.*, **37** (11), 2157 (2012).
5. Demyanov A.V., Kochetov I.V., Mikheyev P.A. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **46** (37), 375202 (2013).
6. Demyanov A.V., Kochetov I.V., Mikheyev P.A., Azyazov V.N., Heaven M.C. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **51** (4), 045201 (2018).
7. Yang Z., Yu G., Wang H., Lu Q., Xu X. *Opt. Express*, **23** (11), 13823 (2015).
8. Ionin A.A., Kholin I.V., L'dov A.Yu., Seleznev L.V., Ustinovskii N.N., Zayarnyi D.A. *Laser Phys.*, **27** (12), 125803 (2017).
9. Emmons D.J., Weeks D.E. *J. Appl. Phys.*, **121** (20), 203301 (2017).
10. Wieme W., Lenaerts J. *J. Chem. Phys.*, **74** (1), 483 (1981).