

高压同位素 CO₂ 皮秒激光脉冲放大输出特性理论研究

叶静涵^{1,2}, 朱子任^{1,2}, 白进周^{1,2}, 刘羽^{1,2}, 谭荣清¹, 郑义军^{1*}, 苏新军³

¹中国科学院空天信息创新研究院, 北京 100094;

²中国科学院大学电子电气与通信工程学院, 北京 100049;

³粒子输运与富集技术国家级重点实验室, 天津 300180

摘要 为了克服高压 CO₂ 激光脉冲放大器增益谱线调制效应、平滑增益谱线包络以及减少次级脉冲输出, 笔者以多种 CO₂ 同位素混合物为工作介质, 建立了超短 CO₂ 脉冲放大模型, 模拟了不同中心波长的长波皮秒激光脉冲注入不同气压、不同比例 CO₂ 同位素的高压 CO₂ 激光放大器后的增益谱线特性和脉冲输出特性。模拟结果表明: 在气压为 5 bar、¹³C 和 ¹⁸O 原子占比均为 50% 的条件下, 10.591 μm 附近的增益谱调制度为 19.65%, R 支较 P 支增益谱调制度降低了约 40%, 较好地抑制了次级脉冲输出。在气压为 10 bar 的条件下, 对脉宽为 0.3 ps、能量为 0.01 J 的种子光进行模拟放大, 结果显示: 在 9 μm 波段, 采用 ¹²C 和 ¹³C 的 6 种 CO₂ 同位素放大的激光脉宽相比采用 ¹²C 的 3 种 CO₂ 同位素放大的激光脉宽压缩了 28.14%, 拖尾能量占比下降了 46.37%; 在 10 μm 波段, 采用 ¹²C 和 ¹³C 的 6 种 CO₂ 同位素放大的激光脉宽相比采用 ¹³C 的 3 种 CO₂ 同位素放大的激光脉宽压缩了 23.26%, 拖尾能量占比下降了 40.06%。

关键词 激光光学; CO₂ 激光放大器; CO₂ 同位素; 增益谱平滑; 皮秒脉冲

中图分类号 TN248.2

文献标志码 A

DOI: 10.3788/CJL221558

1 引言

高压 CO₂ 激光脉冲放大器具有增益体积大、增益谱线宽的特点, 近年来成为长波啁啾脉冲放大 (CPA) 系统^[1-2]、多级主振荡功率大 (MOPA) 振放系统^[3-4] 以及高能激光系统^[5-6] 的重要研究方向之一。在 10 μm 波长附近, 高压 CO₂ 激光脉冲放大器可获得 TW 量级的激光脉冲输出, 在激光分离同位素^[7]、激光驱动粒子加速^[8]、激光诱导核聚变^[9] 等领域具有重要的应用价值。

当 CO₂ 混合气压超过 1 bar 时, 分子碰撞导致谱线加宽; 当气压超过 10 bar 时, 增益谱带宽超过 1 THz^[10], 可以实现长波皮秒脉冲放大。但是, 转动能级间隔产生的增益谱线周期性频率调制效应会导致放大后的激光脉冲出现次级脉冲, 严重影响了主脉冲能量的提取和进一步放大。

利用不同同位素分子的特性差异实现中心谱线频移, 可以增强增益谱连续性、降低增益谱线的周期性频谱调制度, 从而抑制次级脉冲输出。2011 年, Polyanskiy 等^[11] 在工作气压为 10 bar 的条件下, 采用 ¹⁸O 原子占比为 50% 的 ¹²C 三种同位素对 5 ps 长波激光脉冲进行放大, 实验结果表明, 次级脉冲得到抑制。2018 年, Pezh 等^[12]

对该实验进行模拟计算, 验证了同位素对次级脉冲的抑制作用, 但模拟结果中仍有次级脉冲输出。2021 年, Polyanskiy 等^[13] 采用 ¹⁸O 占比为 47% 的 ¹²C 三种同位素, 在 9 μm 波段对 0.3 ps、0.01 J 的种子光进行放大, 输出激光脉宽增大到 0.5 ps, 拖尾能量占比为 25%。上述研究表明: 对于皮秒量级长波脉冲的放大, 采用三种同位素混合不能完全抑制次级脉冲输出; 对于亚皮秒量级的长波脉冲, 放大后的激光脉宽会大幅增加, 且拖尾能量占比较大。

笔者建立了适用于 6 种 CO₂ 同位素的长波超短脉冲放大模型, 模拟了不同比例的 6 种 CO₂ 同位素、不同气压和不同谱带条件下的增益谱带特性及脉冲输出特性。采用更多种类同位素混合来放大长波超短脉冲的方法, 可以降低增益谱调制度、拓宽增益谱带, 从而抑制了次级脉冲输出。

2 理论模型

常规 ¹²C¹⁶O₂ 的光谱范围为 9~11 μm。由于同位素分子的振转能级不同, 同位素分子的跃迁波长存在一定差异, 光谱范围被扩展到 8.9~12.3 μm, 在此区间约有数千条激光谱线。图 1 给出了 ¹²C¹⁶O₂ 分子及其 5 种同位素 (¹²C¹⁶O¹⁸O、¹²C¹⁸O₂、¹³C¹⁶O₂、¹³C¹⁶O¹⁸O、¹³C¹⁸O₂) 的辐

收稿日期: 2022-12-22; 修回日期: 2023-02-04; 录用日期: 2023-03-13; 网络首发日期: 2023-03-23

基金项目: 粒子输运与富集技术国防科技重点实验室基金 (QT210005)

通信作者: *yjzheng@mail.ie.ac.cn

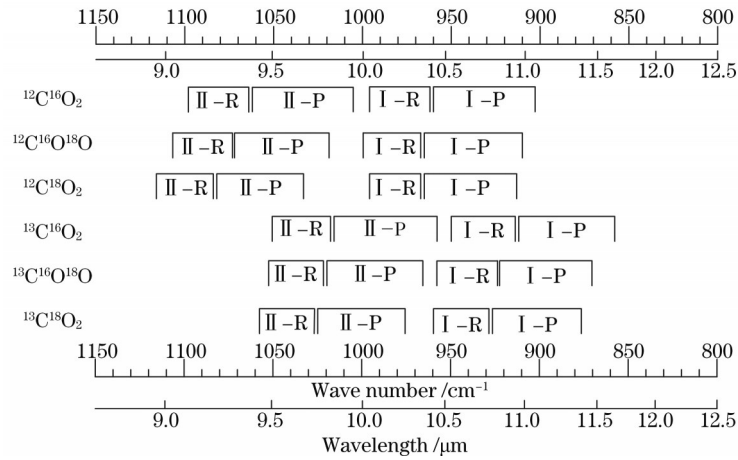


图 1 CO₂ 同位素于 00⁰1-10⁰ 及 00⁰1-02⁰ 谱带的激光跃迁

Fig. 1 Laser transitions of CO₂ isotopes at bands 00⁰1-10⁰ and 00⁰1-02⁰

射波长范围^[14]。I-P 和 I-R 表示 00⁰1-10⁰ 的 P 支和 R 支跃迁, II-P 和 II-R 表示 00⁰1-02⁰ 的 P 支和 R 支跃迁。

当 CO₂ 中氧的相对原子质量不变时, CO₂ 同位素的激光波长随着碳相对原子质量的增加向长波方向移动; 当 CO₂ 中碳的相对原子质量不变时, CO₂ 同位素的激光波长随着氧相对原子质量的增加向短波方向移动。¹²C¹⁶O¹⁸O 和 ¹³C¹⁶O¹⁸O 中的两个氧原子不同, 分子的对称性被打破, 它们的每个振动分支上的振转跃迁谱线是其他对称性分子的两倍, 即 60 条谱线, 谱线密度更高。

脉冲放大特性^[15]可描述为

$$\frac{\partial E}{\partial z} = -\sum_J \rho_J, \quad (1)$$

$$\frac{\partial \rho_J}{\partial t} + \left[2\pi i(\nu_c - \nu_J) + \frac{1}{\tau_2} \right] \rho_J = -\frac{\sigma_J n_J E}{2\tau_2}, \quad (2)$$

$$\frac{\partial n_J}{\partial t} + \frac{n_J - n_J^0}{\tau_R} = 4(\rho_J E^* + c.c.), \quad (3)$$

式中: J 为转动量子数; E 为光场场强; ρ_J 为介质极化率; z 为光束传播方向; n_J 为下能级转动量子数为 J 的反转粒子数; n_J^0 为转动平衡的反转粒子数; ν_c 为载频; ν_J 为谱线的中心频率; σ_J 为谱线中心频率的跃迁截面; τ_2 为极化退相时间; τ_R 为旋转弛豫时间。

P 支和 R 支跃迁频率的计算公式为

$$\nu_J = \begin{cases} V + B_U(J-1)J - B_L J(J+1), & \text{for P-band} \\ V + B_U(J+1)(J+2) - B_L J(J+1), & \text{for R-band} \end{cases}, \quad (4)$$

式中: V 为相应跃迁的振动常数; B_U 和 B_L 为相应上能级和下能级的转动常数。

谱线中心频率的跃迁截面为

$$\sigma_J = \frac{\lambda_J A_J}{4} \times \frac{\tau_2}{\pi}, \quad (5)$$

式中: λ_J 为谱线中心波长; A_J 为自发辐射系数。式(5)等号后第一项定义为谱线的积分截面, 第二项定义为宽度为 $2\pi\Delta\nu_{\text{HWHM}} = 1/\tau_2$ 的归一化洛伦兹线型的最

大值。

处于转动平衡的反转粒子数为

$$n_J^0 = \begin{cases} z(J-1)N_U - z(J)N_L, & \text{for P-band} \\ z(J+1)N_U - z(J)N_L, & \text{for R-band} \end{cases}, \quad (6)$$

式中: N_U 和 N_L 分别为相应上能级和下能级的粒子数密度。

6 种同位素的玻尔兹曼分布为

$$z(J) = \begin{cases} 2 \frac{hB}{kT} (2J+1) \exp\left[-\frac{hB}{kT} J(J+1)\right], & \text{for } ^{12}\text{C}^{16}\text{O}_2, ^{13}\text{C}^{16}\text{O}_2, ^{12}\text{C}^{18}\text{O}_2, ^{13}\text{C}^{18}\text{O}_2 \\ \frac{hB}{kT} (2J+1) \exp\left[-\frac{hB}{kT} J(J+1)\right], & \text{for } ^{12}\text{C}^{16}\text{O}^{18}\text{O}, ^{13}\text{C}^{16}\text{O}^{18}\text{O} \end{cases}, \quad (7)$$

式中: h 为普朗克常数, $h=6.626 \times 10^{-34}$ J·s; k 为玻尔兹曼常数, $k=1.38 \times 10^{-23}$ J/K; T 为气体的温度。

极化退相时间 τ_2 和旋转弛豫时间 τ_R 分别表示为

$$\tau_2 = \frac{10^{-6}}{\pi \times 7.61 \times 750 \times (P_{\text{CO}_2} + 0.733P_{\text{N}_2} + 0.64P_{\text{He}})}, \quad (8)$$

$$\tau_r = \frac{10^{-7}}{750 \times (1.3P_{\text{CO}_2} + 1.2P_{\text{N}_2} + 0.6P_{\text{He}})}, \quad (9)$$

式中气压 P 的单位为 bar。

时间平均光强度 I 与场振幅 E 相关, 即

$$I = 2h\nu_c E^2. \quad (10)$$

本模型考虑了 CO_2 分子常规带、序列带和热带的影 响, 对激光能级的泵浦和弛豫动力学进行模拟。光谱数据主要来自 HITRAN 2016 数据库^[16]。

3 参量计算与分析

采用上述模型对 ^{13}C 、 ^{18}O 不同原子占比条件下的输出特性, $^{12}\text{C}^{16}\text{O}_2$ 、 $^{12}\text{C}^{16}\text{O}^{18}\text{O}$ 、 $^{12}\text{C}^{18}\text{O}_2$ 分子数比为 1:2:1 条件下 9R、9P、10R、10P 等 4 支强线处的输出特性, 以及不同气压、不同 CO_2 同位素 ($^{12}\text{C}^{16}\text{O}_2$ 以及 ^{13}C 和 ^{18}O 原子占比均为 50% 的 6 种 CO_2 同位素混合物) 条件下的输出特性进行计算。

3.1 不同原子占比下的输出特性

本次模拟所用种子激光和放大器参数如表 1 所示。

表 1 入射高斯脉冲的参数及放大器配置

Table 1 Parameters of incident Gaussian pulse and amplifier configuration

Index	Content
Pulse energy / J	0.01
Pulse width (FWHM) / ps	5
Central wavelength / μm	10.591
Band width (FWHM) / THz	0.088
Beam radius (HWHM) / cm	0.25
Gain volume / (cm \times cm \times cm)	$2 \times 2 \times 100$
Electrode length / m	1.0
Peak voltage / kV	100
Volume ratio of CO_2 , N_2 , and He	1:1:8
Gas pressure / bar	5
Temperature / K	300
Entrance and exit windows material	NaCl
Attenuation	0.96

以增益谱的调制度来表示增益谱的平滑程度^[17], 即

$$M = \frac{G_{\text{max}} - G_{\text{min}}}{G_{\text{max}} + G_{\text{min}}}, \quad (11)$$

式中: G_{max} 是谱线中心增益; G_{min} 是两中心谱线之间的最小增益; M 是调制度。

CO_2 同位素的占比由碳、氧同位素的占比表示, 即

$$[^{12}\text{C}^{16}\text{O}_2] = [^{12}\text{C}][^{16}\text{O}]^2, \quad (12)$$

$$[^{12}\text{C}^{16}\text{O}^{18}\text{O}] = 2[^{12}\text{C}][^{16}\text{O}][^{18}\text{O}], \quad (13)$$

$$[^{12}\text{C}^{18}\text{O}_2] = [^{12}\text{C}][^{18}\text{O}]^2, \quad (14)$$

$$[^{13}\text{C}^{16}\text{O}_2] = [^{13}\text{C}][^{16}\text{O}]^2, \quad (15)$$

$$[^{13}\text{C}^{16}\text{O}^{18}\text{O}] = 2[^{13}\text{C}][^{16}\text{O}][^{18}\text{O}], \quad (16)$$

$$[^{13}\text{C}^{18}\text{O}_2] = [^{13}\text{C}][^{18}\text{O}]^2, \quad (17)$$

式中: $[^{12}\text{C}^{16}\text{O}_2]$ 表示 $^{12}\text{C}^{16}\text{O}_2$ 分子数占所有 CO_2 分子数的比例; $[^{12}\text{C}]$ 表示 ^{12}C 原子数占所有碳原子数的比例; $[^{16}\text{O}]$ 表示 ^{16}O 原子数占所有氧原子数的比例。其他同位素以此类推。

图 2 是 ^{13}C 、 ^{18}O 不同原子占比条件下输出特性的计算结果。

由图 2 所示时域波形可知: 当 ^{13}C 和 ^{18}O 的原子占比均为 50% ($^{12}\text{C}^{16}\text{O}_2$ 、 $^{12}\text{C}^{16}\text{O}^{18}\text{O}$ 、 $^{12}\text{C}^{18}\text{O}_2$ 、 $^{13}\text{C}^{16}\text{O}_2$ 、 $^{13}\text{C}^{16}\text{O}^{18}\text{O}$ 、 $^{13}\text{C}^{18}\text{O}_2$ 的分子数之比为 1:2:1:1:2:1) 时, 无次脉冲生成, 输出能量和主脉冲峰值功率最低; 当 ^{13}C 和 ^{18}O 的原子占比大于或小于 50% 时, 输出能量和主脉冲峰值功率升高, 但主脉冲的能量占比减小, 次脉冲的数量和能量占比增加。由图 2 所示的输出频谱和增益谱可知: 当 ^{13}C 和 ^{18}O 的原子占比为 50% 时, 增益谱调制度最低, 峰值增益也最低; 当 ^{13}C 和 ^{18}O 的原子占比大于或小于 50% 时, 增益谱调制度和峰值增益增加。这是由于不同 CO_2 同位素分子谱线的中心频率不一致, 某种 CO_2 同位素分子的占比过大 (或过小) 会导致对应谱线附近的增益较高 (或较低), 其他同位素分子对应谱线附近的增益较低 (或较高), 因此在一段频谱范围内增益谱的调制度升高, 平滑程度变弱。强烈的调制效应使得次脉冲的比重增加。当 ^{13}C 和 ^{18}O 的原子占比均为 50% 时, 各同位素分子在一段频谱范围内的增益贡献相对适中, 总增益分布较为均匀, 调制度较低, 但峰值增益相对下降, 进而输出脉冲能量降低。

主脉冲与次脉冲之间的脉冲间隔同增益谱线间隔存在关联。当 ^{13}C 和 ^{18}O 的比例小于 50% 时, 脉冲间隔为 18.433 ps; 当 ^{13}C 和 ^{18}O 的占比大于 50% 时, 脉冲间隔为 30.457 ps。皮秒级 CO_2 激光脉冲的光谱可以覆盖多条振转能级谱线, 在放大过程中, 光谱包络线的调制通过傅里叶逆变换转换成时域上的脉冲序列, 这些脉冲在时间上的间隔为

$$\Delta t = (c \times \Delta\nu)^{-1}, \quad (18)$$

式中: c 为光速, cm/s; $\Delta\nu$ 为谱线间隔, cm^{-1} 。 $^{12}\text{C}^{16}\text{O}_2$ 与 $^{13}\text{C}^{18}\text{O}_2$ 在 10.591 μm 附近的谱线间隔分别为 1.810 cm^{-1} 和 1.095 cm^{-1} , 与脉冲间隔 18.433 ps 和 30.457 ps 相对应。

3.2 不同支带处的输出特性

为了分析不同支带的输出特性, 以中心波长为 10.532、10.247、9.411、9.222 μm 的 4 条强线分别代表 10P、10R、9P、9R 这 4 个支带, 计算了 $^{12}\text{C}^{16}\text{O}_2$ 、 $^{12}\text{C}^{16}\text{O}^{18}\text{O}$ 、 $^{12}\text{C}^{18}\text{O}_2$ 分子数比为 1:2:1 (^{18}O 原子占比为 50%) 条件下 4 个支带处的输出脉冲波形、频谱及放大器增益谱, 结果如图 3 所示, 其他参数与表 1 保持一致。

对比图 2(e)、(f) 和图 3(a)、(b) 可以发现: 在 10P

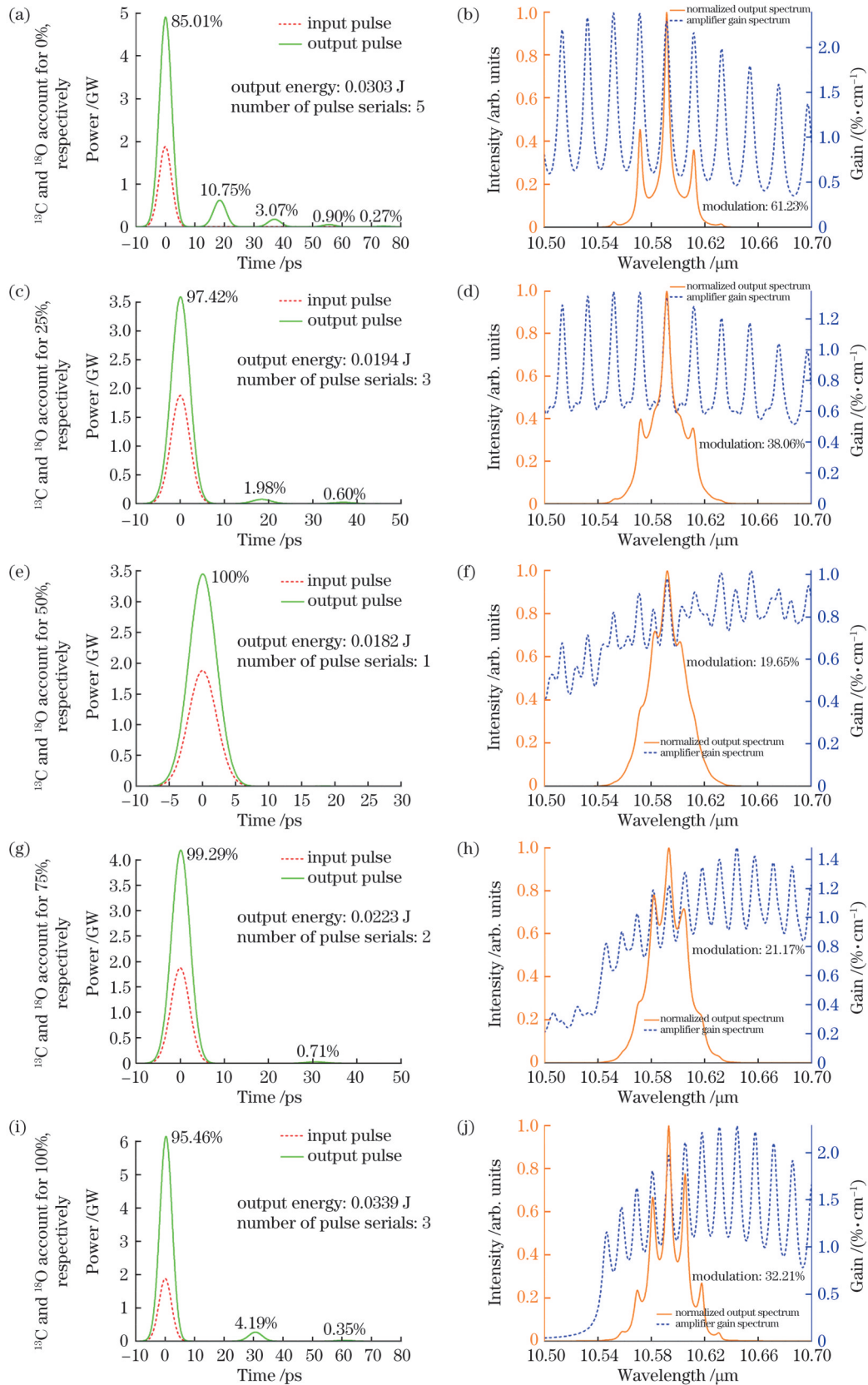


图 2 不同原子占比下的输出特性,其中左图为输入输出脉冲波形,右图为输出频谱与放大器增益谱。(a)(b) ¹³C 和 ¹⁸O 各占 0%; (c)(d) ¹³C 和 ¹⁸O 各占 25%;(e)(f) ¹³C 和 ¹⁸O 各占 50%;(g)(h) ¹³C 和 ¹⁸O 各占 75%;(i)(j) ¹³C 和 ¹⁸O 各占 100%

Fig. 2 Output characteristics under different atom ratios, where the left images show the input and output pulse waveforms and the right images show the output spectra and amplifier gain spectra. (a)(b) ¹³C and ¹⁸O account for 0%, respectively; (c)(d) ¹³C and ¹⁸O account for 25%, respectively; (e)(f) ¹³C and ¹⁸O account for 50%, respectively; (g)(h) ¹³C and ¹⁸O account for 75%, respectively; (i)(j) ¹³C and ¹⁸O account for 100%, respectively

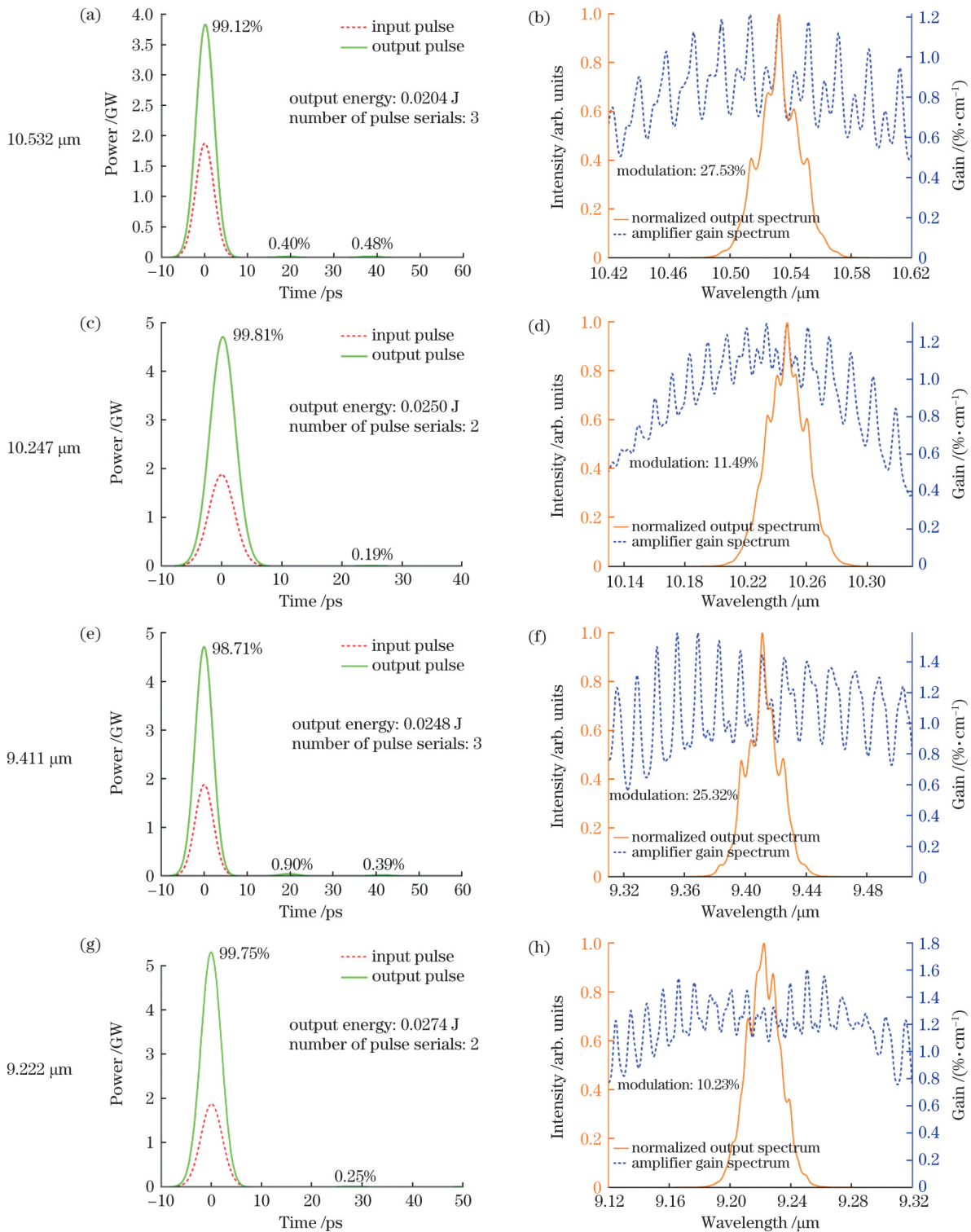


图3 ^{18}O 原子占比为 50% 条件下 4 个支带处的输出特性, 其中左图为输入输出脉冲波形, 右图为输出频谱与放大器增益谱。
(a)(b) 10.532 μm ; (c)(d) 10.247 μm ; (e)(f) 9.411 μm ; (g)(h) 9.222 μm

Fig. 3 Output characteristics in four bands with ^{18}O accounting for 50% , where the left images are the input/output pulse waveforms and the right images are the output spectra and amplifier gain spectra. (a)(b) 10.532 μm ; (c)(d) 10.247 μm ; (e)(f) 9.411 μm ; (g)(h) 9.222 μm

波段的强线处, 同等气压同等注入条件下, ^{13}C 和 ^{18}O 比例各为 50% 的 6 种 CO_2 同位素输出的次脉冲个数和能量占比相较 ^{18}O 比例为 50% 的 ^{12}C 的 3 种 CO_2 同位素输出的更低。更多种类同位素的混合使得增益谱错峰交叠, 提高了谱线的平滑度, 减少了次脉冲。对比图 3 所

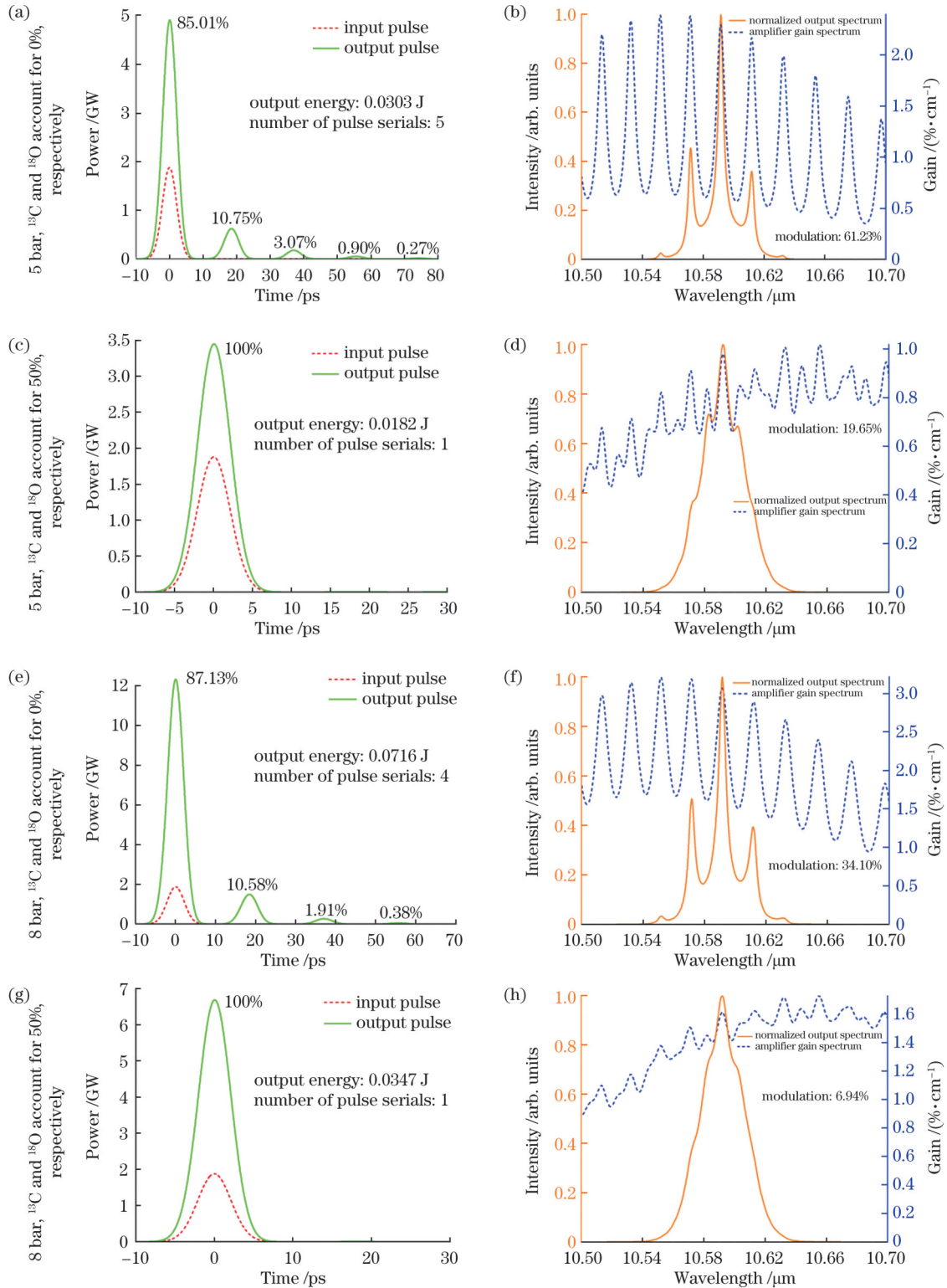
示的 R 支和 P 支可以发现 R 支谱线的平滑程度较 P 支更为明显, 次级脉冲的数量和能量占比得到更好的抑制, 在输出能量上 R 支也比 P 支更大。9R、9P、10R、10P 支带的谱线间距分别为 1.160、1.828、1.178、1.810 cm^{-1} , R 支谱线结构较 P 支更为密集。在高气压下, 谱线洛伦

兹线型被加宽, 相邻谱线发生重叠, 间距越小, 重叠程度越高, 因此 R 支更易获得平滑增益谱。另外, 任何频率处的增益都是附近谱线的增益贡献之和, 在高气压下相邻谱线的重叠也可以显著增加 R 支的峰值强度。P 支谱线由于线距较大, 平滑程度和增益提高效果较弱。4 个支带中的 9R 支带的输出能量最大, 调制度最低; 但 9R 支带的增益谱中仍存在轻微调制, 导致脉冲

波形存在微弱能量的次脉冲。

3.3 不同气压下的输出特性

为了进一步平滑增益谱, 降低调制度, 提升增益幅值, 在保持电注入密度以及 CO_2 、 N_2 、 He 配比不变的条件下, 计算了不同气压及不同 CO_2 同位素条件下 10.591 μm 处的输出特性, 计算结果如图 4 所示。



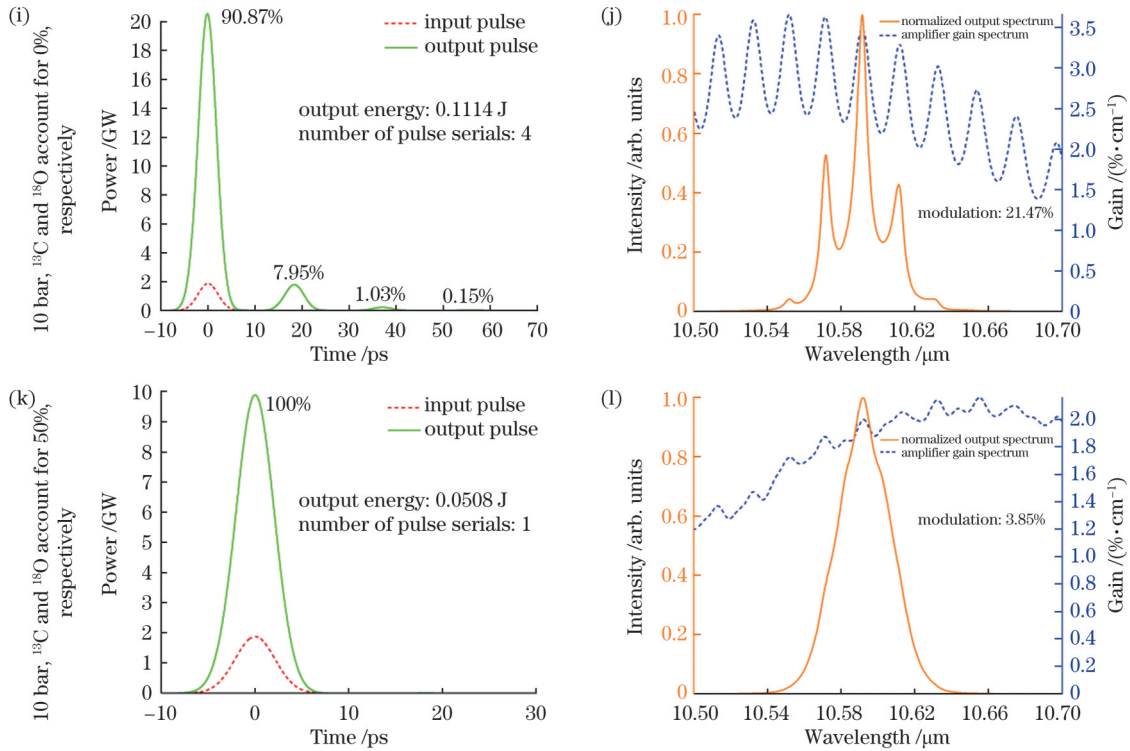


图 4 不同气压以及不同 CO₂ 同位素 (¹²C¹⁶O₂ 以及 ¹³C 和 ¹⁸O 各占 50% 的 6 种 CO₂ 同位素混合物) 条件下的输出特性, 其中左图为输入输出脉冲波形, 右图为输出频谱与放大器增益谱。(a)(b) 5 bar, ¹³C 和 ¹⁸O 的占比各为 0%; (c)(d) 5 bar, ¹³C 和 ¹⁸O 的占比各为 50%; (e)(f) 8 bar, ¹³C 和 ¹⁸O 的占比各为 0%; (g)(h) 8 bar, ¹³C 和 ¹⁸O 的占比各为 50%; (i)(j) 10 bar, ¹³C 和 ¹⁸O 的占比各为 0%; (k)(l) 10 bar, ¹³C 和 ¹⁸O 的占比各为 50%

Fig. 4 Output characteristics under the conditions of different pressures and CO₂ isotopes (¹²C¹⁶O₂ and the gas with six CO₂ isotopes with ¹³C and ¹⁸O accounting for 50%, respectively) at 5, 8 and 10 bar, where the left images are the input/output pulse waveforms and the right images are the output spectra and amplifier gain spectra. (a)(b) At 5 bar, the proportions of ¹³C and ¹⁸O are 0%, respectively; (c)(d) at 5 bar, the proportions of ¹³C and ¹⁸O are 50%, respectively; (e)(f) at 8 bar, the proportions of ¹³C and ¹⁸O are 0%, respectively; (g)(h) at 8 bar, the proportions of ¹³C and ¹⁸O are 50%, respectively; (i)(j) at 10 bar, the proportions of ¹³C and ¹⁸O are 0%, respectively; (k)(l) at 10 bar, the proportions of ¹³C and ¹⁸O are 50%, respectively

气压高于 1.333 kPa 时, 谱线加宽主要由碰撞引起。CO₂、N₂ 和 He 气体混合物的碰撞线宽^[18] (HWHM) 为

$$\Delta\nu_{\text{pressure}} = 0.1149P_{\text{CO}_2} + 0.0794P_{\text{N}_2} + 0.0598P_{\text{He}}, \quad (19)$$

式中: $\Delta\nu_{\text{pressure}}$ 的单位为 cm⁻¹; P 的单位为 bar。在 5、8、10 bar 下, $\Delta\nu_{\text{pressure}}$ 分别为 0.33、0.54、0.63 cm⁻¹。

升高工作气压可使碰撞线宽增大, 增益重叠增多, 增益谱调制度减小, 幅值升高, 继而使脉冲分裂程度减小, 输出能量和峰值功率增大。不添加同位素时, 提升压力对增益谱的平滑作用并不显著。10 bar 下 ¹²C¹⁶O₂ 的调制度 (21.47%) 比 5 bar 下 ¹³C 和 ¹⁸O 各占 50% 的 CO₂ 同位素的调制度 (19.65%) 还高, 且 ¹²C¹⁶O₂ 的输出脉冲数为 4 个, 并未得到很好的改善, 只有在同位素混合物中, 脉冲分裂才能被完全抑制。10 bar 下, ¹³C 和 ¹⁸O 占比均为 50% 的 CO₂ 同位素的输出频谱接近高斯型, 而 ¹²C¹⁶O₂ 的输出频谱仍表现出强烈的调制效应; 但在输出能量方面, ¹²C¹⁶O₂ 比 ¹³C 和 ¹⁸O 各占 50% 的 CO₂ 同位素提高了 119.3%。

计算了 10 bar 下 10.591 μm 附近的增益 [如图 4(l)]

所示] 以及各部分同位素 (1/8 ¹²C¹⁶O₂、1/4 ¹²C¹⁶O¹⁸O、1/8 ¹²C¹⁸O₂、1/8 ¹³C¹⁶O₂、1/4 ¹³C¹⁶O¹⁸O 和 1/8 ¹³C¹⁸O₂) 的增益贡献, 计算结果如图 5 所示。

结果表明, 每种同位素增益谱线的中心频率都具

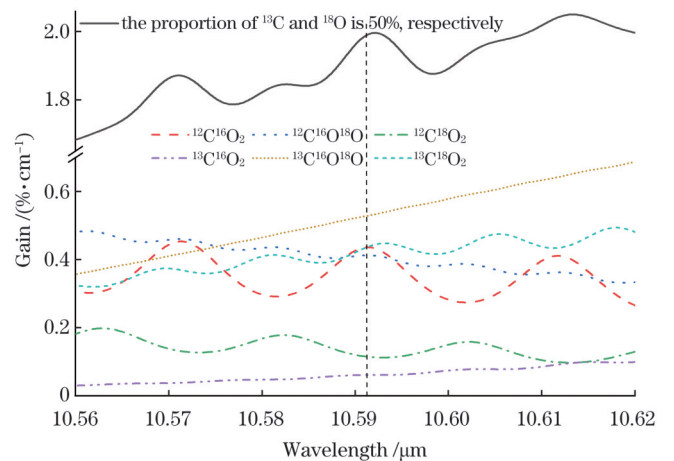


图 5 10 bar 下 10.591 μm 附近的增益及各同位素的增益贡献
Fig. 5 Gain near 10.591 μm at 10 bar and gain contribution of each isotope

有一定的偏移,且谱线密度、调制度均不相同。在 10.591 μm 附近, $^{12}\text{C}^{16}\text{O}_2$ 的增益调制度最高。添加其他 5 种同位素可以显著减小增益包络的调制度,但也在一定程度上降低了能量。

4 长波亚皮秒激光脉冲放大

亚皮秒脉冲的放大至少需要 THz 量级的增益带宽。由图 1 可知, $^{12}\text{C}^{16}\text{O}_2$ 、 $^{12}\text{C}^{16}\text{O}^{18}\text{O}$ 和 $^{12}\text{C}^{18}\text{O}_2$ 混合适合

9 μm 谱带的放大, $^{13}\text{C}^{16}\text{O}_2$ 、 $^{13}\text{C}^{16}\text{O}^{18}\text{O}$ 和 $^{13}\text{C}^{18}\text{O}_2$ 混合适合 10 μm 谱带的放大。图 6(a)、(b)、(c) 分别为 10 bar 下不同 CO_2 同位素($^{12}\text{C}^{16}\text{O}_2$ 、 $^{12}\text{C}^{16}\text{O}^{18}\text{O}$ 、 $^{12}\text{C}^{18}\text{O}_2$ 的分子比为 1:2:1,即, ^{13}C 占 0%, ^{18}O 占 50%; $^{13}\text{C}^{16}\text{O}_2$ 、 $^{13}\text{C}^{16}\text{O}^{18}\text{O}$ 、 $^{13}\text{C}^{18}\text{O}_2$ 的分子比为 1:2:1,即, ^{13}C 占 100%, ^{18}O 占 50%; $^{12}\text{C}^{16}\text{O}_2$ 、 $^{12}\text{C}^{16}\text{O}^{18}\text{O}$ 、 $^{12}\text{C}^{18}\text{O}_2$ 、 $^{13}\text{C}^{16}\text{O}_2$ 、 $^{13}\text{C}^{16}\text{O}^{18}\text{O}$ 、 $^{13}\text{C}^{18}\text{O}_2$ 的分子比为 1:2:1:1:2:1,即, ^{13}C 占 50%, ^{18}O 占 50%) 的全谱带增益谱。

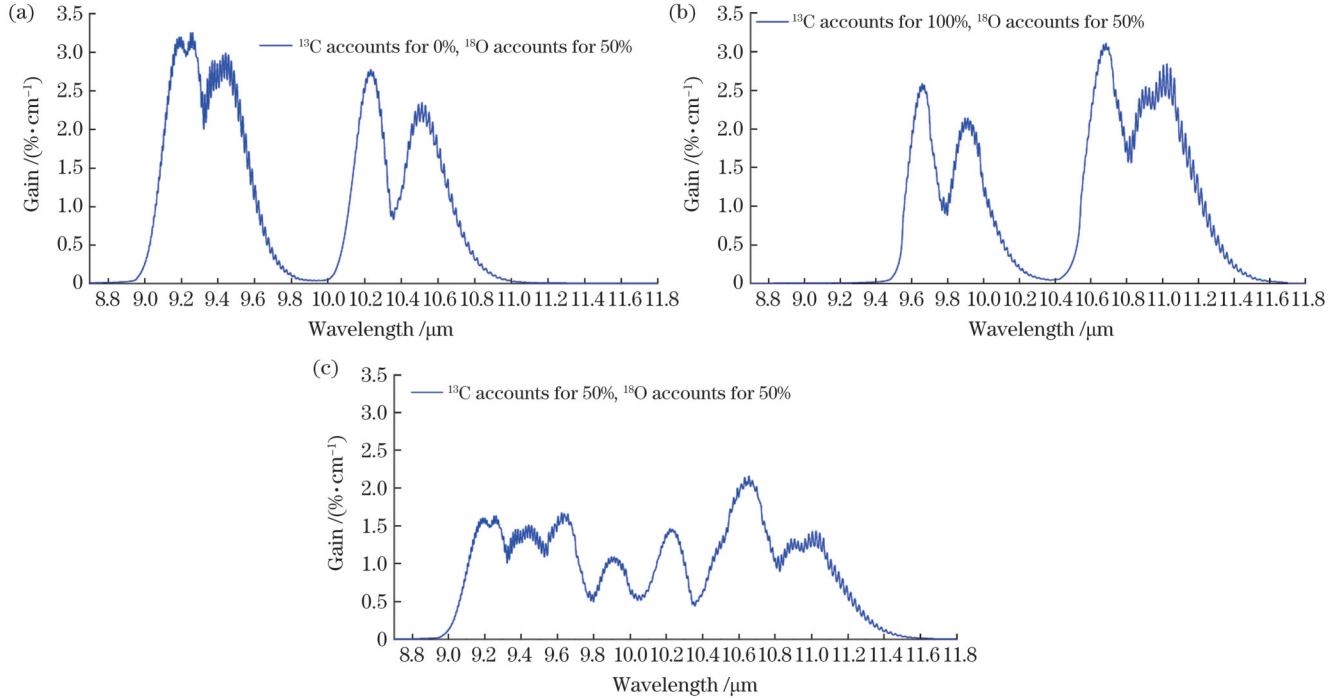


图 6 8.8~11.7 μm 波段的放大器增益谱。(a) ^{13}C 占 0%, ^{18}O 占 50%; (b) ^{13}C 占 100%, ^{18}O 占 50%; (c) ^{13}C 占 50%, ^{18}O 占 50%
Fig. 6 Amplifier gain spectra at 8.8–11.7 μm band. (a) ^{13}C accounts for 0% and ^{18}O accounts for 50%; (b) ^{13}C accounts for 100% and ^{18}O accounts for 50%; (c) ^{13}C accounts for 50% and ^{18}O accounts for 50%

从图 6 可以看出: ^{12}C 的 3 种 CO_2 同位素混合时,波段范围为 8.8~11.1 μm ,且 9.6~10.1 μm 波段的增益较低; ^{13}C 的 3 种 CO_2 同位素混合时,波段范围为 9.3~11.7 μm ,且 10.1~10.5 μm 波段的增益较低。图 6(c) 显示 6 种 CO_2 同位素的增益叠加使得 8.8~11.7 μm 波段均有增益。增益谱的重叠使得 CO_2 同位素激光放大器可提供亚皮秒脉冲放大所需的带宽。

以脉宽为 0.3 ps、带宽为 1.466 THz、能量为 0.01 J 的超短脉冲作为种子源注入图 6 所示的放大器增益介质,模拟计算得到了图 7 所示的脉冲波形和输出频谱。为了使放大器增益谱更好地匹配种子激光频谱,计算过程中对种子激光的中心波长进行了适当调整。

如图 7 所示,脉冲放大后,脉宽有所增加。这是由于放大器增益在种子激光频谱范围内呈中心波长附近较高而边缘两侧较低的分布,放大器集中放大中心波长附近的激光能量,导致输出频谱的宽度变窄,放大后的脉宽比种子光脉宽宽。

无论是处于 9 μm 波段还是处于 10 μm 波段,采用 6 种同位素放大后的脉宽增量相比采用 3 种同位素放

大后的脉宽增量更小,拖尾的能量占比也更低。在 9 μm 波段处, ^{13}C 和 ^{18}O 各占 50% 的 6 种 CO_2 同位素放大的脉宽较 ^{18}O 占 50% 的 ^{12}C 的 3 种 CO_2 同位素放大的脉宽减小了 0.130 ps (28.14%),拖尾能量占比减小了 46.37%。这是由于此波段处前者条件下的放大器增益谱频带宽度比后者增大了 0.533 THz,放大器较高的增益覆盖的种子激光频谱的范围也更宽。但在后者条件下放大器的增益较高,放大后脉冲的峰值功率较高,故其放大能量是前者的 3.14 倍。在 10 μm 波段处, ^{13}C 和 ^{18}O 各占 50% 的 6 种 CO_2 同位素条件下的增益谱频带较 ^{18}O 占 50% 的 ^{13}C 的 3 种同位素条件下的增益谱频带拓宽了 0.094 THz,放大后脉宽减小了 0.104 ps (23.26%),拖尾能量占比减小了 40.06%,后者放大能量是前者的 2.07 倍。

^{13}C 和 ^{18}O 原子占比各为 50% 时,10 μm 波段的放大能量比 9 μm 波段高 7.62%,但 9 μm 波段放大后脉宽增量较 10 μm 波段减小了 0.011 ps (3.21%),拖尾能量占比减小了 50.93%,并且 10 μm 波段种子光的 10.4~10.8 μm 频谱被着重放大,而 9 μm 波段的放大较

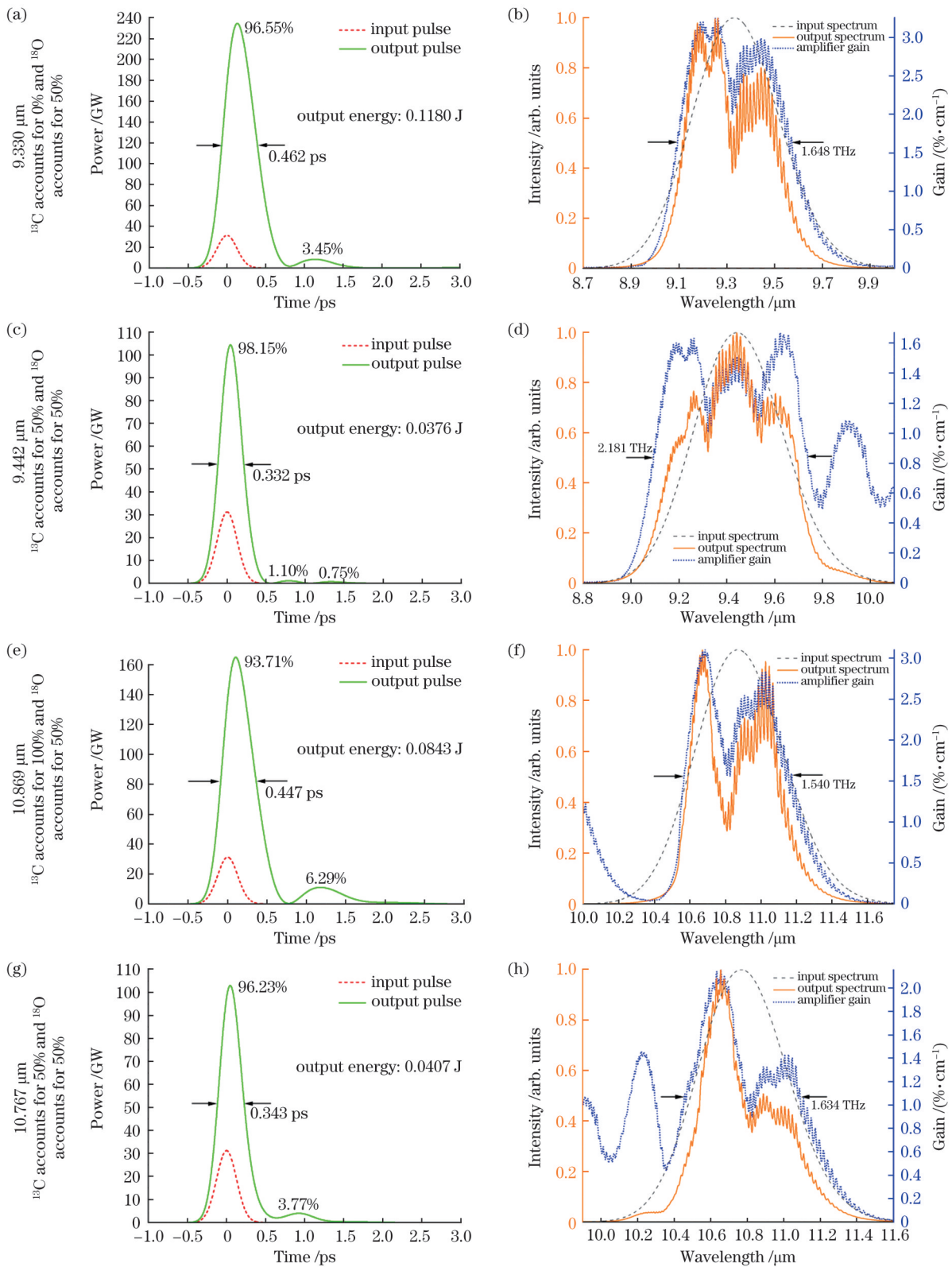


图 7 不同 CO₂ 同位素 (¹²C 的 3 种 CO₂ 同位素、¹³C 的 3 种 CO₂ 同位素以及全部 6 种 CO₂ 同位素) 条件下 9、10 μm 谱带处的输出特性, 其中左图为输入输出脉冲波形, 右图为输入输出频谱与放大器增益谱。(a)(b) 9.330 μm, ¹³C 占 0%, ¹⁸O 占 50%; (c)(d) 9.442 μm, ¹³C 占 50%, ¹⁸O 占 50%; (e)(f) 10.869 μm, ¹³C 占 100%, ¹⁸O 占 50%; (g)(h) 10.767 μm, ¹³C 占 50%, ¹⁸O 占 50%

Fig. 7 Output characteristics at 9 and 10 μm band under different CO₂ isotopes (three isotopes of ¹²C, three isotopes of ¹³C and all six isotopes), where the left images are the input/output pulse waveforms and the right images are the input/output spectra and amplifier gain spectra. (a)(b) 9.330 μm, ¹³C accounts for 0% and ¹⁸O accounts for 50%; (c)(d) 9.442 μm, ¹³C accounts for 50% and ¹⁸O accounts for 50%; (e)(f) 10.869 μm, ¹³C accounts for 100% and ¹⁸O accounts for 50%; (g)(h) 10.767 μm, ¹³C accounts for 50% and ¹⁸O accounts for 50%

为均匀。综上,9 μm 波段对亚皮秒脉冲的放大效果较好。

Polyanskiy 等^[13]将 ^{18}O 占 47% 的 ^{12}C 的三种 CO_2 同位素混合气作为工作介质,于 9R、9P 支带放大相同脉宽和能量的种子激光,得到了脉宽为 0.5 ps、拖尾能量占比为 25% 的输出脉冲。结合 Polyanskiy 等^[13]的数据与本文数据可以发现,混合 6 种同位素可以扩展增益带宽并能平滑增益谱线,使放大后的亚皮秒脉冲的脉宽增幅降低,脉冲能量更集中,拖尾能量占比更小。

5 结 论

笔者采用数值模拟方法研究了不同中心波长的长波皮秒脉冲注入气压和分子占比不同的 CO_2 同位素激光放大器后的输出特性。结果表明:在气压为 5 bar、 ^{13}C 和 ^{18}O 占比均为 50% 的条件下,10.591 μm 附近的增益谱调制度为 19.65%,R 支较 P 支增益谱调制度降低了约 40%,有效抑制了次级脉冲输出。在气压为 10 bar 的条件下,对于脉宽为 0.3 ps、能量为 0.01 J 的种子光,采用 ^{12}C 和 ^{13}C 的 6 种 CO_2 同位素在 9 μm 波段放大后,激光脉冲脉宽为 0.332 ps,拖尾能量占比为 1.85%;在 10 μm 波段放大后,激光脉冲脉宽为 0.343 ps,拖尾能量占比为 3.77%。与 Polyanskiy 等^[13]在 9 μm 波段采用 ^{12}C 的 3 种 CO_2 同位素对相同种子光进行放大的模拟结果相比,本文脉冲激光脉宽减小了 0.168 ps,拖尾能量占比减小了 23.15%。本文的计算与分析可为高压同位素 CO_2 激光放大器的参量选取提供参考。

参 考 文 献

- [1] Pogorelsky I V, Babzien M, Ben-Zvi I, et al. BESTIA-The next generation ultra-fast CO_2 laser for advanced accelerator research[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A, 2016, 829: 432-437.
- [2] Lü R C, Teng H, Zhu J F, et al. High power Yb-fiber laser amplifier based on nonlinear chirped-pulse amplification at a repetition rate of 1 MHz[J]. Chinese Optics Letters, 2021, 19(9): 091401.
- [3] von Bergmann H. High pressure CO_2 amplifiers for picosecond pulse amplification[J]. Proceedings of SPIE, 2019, 11042: 110420N.
- [4] Lu Y, Zhu Z R, Bai J Z, et al. Generation of tail-free short pulses using high-pressure CO_2 laser[J]. Chinese Optics Letters, 2022, 20(5): 051401.
- [5] Polyanskiy M N, Pogorelsky I V, Marcus B, et al. Demonstration of a 2 ps, 5 TW peak power, long-wave infrared laser based on chirped-pulse amplification with mixed-isotope CO_2 amplifiers[J]. OSA Continuum, 2020, 3(3): 459-472.
- [6] Ionin A A, Kinyaevskiy I O, Klimachev Y M, et al. NH_3 laser THz emission under optical pumping by "long" ($\sim 100 \mu\text{s}$) CO_2 laser pulses[J]. Chinese Optics Letters, 2023, 21(2): 023701.
- [7] Snyder R. A proliferation assessment of third generation laser uranium enrichment technology[J]. Science & Global Security, 2016, 24(2): 68-91.
- [8] Polyanskiy M N, Pogorelsky I V, Babzien M, et al. The 9.2 μm , 2 ps, multi-terawatt laser at the accelerator test facility (ATF) of Brookhaven national laboratory[C] // Conference on Lasers and Electro-Optics, May 5-10, 2019, San Jose, California. New York: IEEE Press, 2019.
- [9] Badziak J, Borzecki M, Dzwigalski Z, et al. Investigation of the electron-beam-controlled CO_2 laser amplifier[J]. Technical Physics, 1984, 25(1): 3-22.
- [10] Miller J L, Ross A H M, George E V. Gain spectrum of a high-pressure CO_2 laser[J]. Applied Physics Letters, 1975, 26(9): 523-526.
- [11] Polyanskiy M N, Pogorelsky I V, Yakimenko V. Picosecond pulse amplification in isotopic CO_2 active medium[J]. Optics Express, 2011, 19(8): 7717-7725.
- [12] Pezh A, Saghafifar H. Theoretical investigation of the regenerative amplification of ultrashort pulses in a high-pressure transverse electric CO_2 laser[J]. Applied Optics, 2018, 57(18): 5249-5256.
- [13] Polyanskiy M N, Pogorelsky I V, Marcus B, et al. Ultrashort-pulse, terawatt, long-wave infrared lasers based on high-pressure CO_2 amplifiers[J]. EPJ Web of Conferences, 2021, 255: 511010.
- [14] Bradley L, Soohoo K, Freed C. Absolute frequencies of lasing transitions in nine CO_2 isotopic species[J]. IEEE Journal of Quantum Electronics, 1986, 22(2): 234-267.
- [15] Polyanskiy M N. Co2amp: a software program for modeling the dynamics of ultrashort pulses in optical systems with CO_2 amplifiers [J]. Applied Optics, 2015, 54(16): 5136-5142.
- [16] Gordon I E, Rothman L S, Hill C, et al. The HITRAN2016 molecular spectroscopic database[J]. Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, 2017, 203: 3-69.
- [17] 卢越, 朱子任, 白进周, 等. 横向激励多大气压 CO_2 激光器[J]. 中国激光, 2022, 49(23): 2301008.
Lu Y, Zhu Z R, Bai J Z, et al. Transversely excited multi-atmospheric-pressure CO_2 laser[J]. Chinese Journal of Lasers, 2022, 49(23): 2301008.
- [18] Brimacombe R, Reid J. Accurate measurements of pressure-broadened linewidths in a transversely excited CO_2 discharge[J]. IEEE Journal of Quantum Electronics, 1983, 19(11): 1668-1673.

Theoretical Research on Output Characteristics of High-Pressure Isotope CO_2 Picosecond Pulse Laser Amplification

Ye Jinghan^{1,2}, Zhu Ziren^{1,2}, Bai Jinzhou^{1,2}, Liu Yu^{1,2}, Tan Rongqing¹, Zheng Yijun^{1*}, Su Xinjun³

¹Aerospace Information Research Institute, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100094, China;

²School of Electronic, Electrical and Communication Engineering, University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China;

³Science and Technology on Particle Transport and Separation Laboratory, Tianjin 300180, China

Abstract

Objective Recently, high-pressure CO_2 laser amplifiers have become an important research direction for chirped pulse

amplification, multi-stage MOPA (master oscillator power amplifier) oscillator amplifier, and high-energy laser systems because of their large gain volume, wide gain line width, smooth gain spectrum, and the ability to output TW lever pulse near 10 μm . These amplifiers have important applications in laser isotope separation, laser-driven particle acceleration, laser-induced nuclear fusion, etc. When the gas pressure is higher than 10 bar, the gain spectrum is quasi-continuous with a bandwidth of more than 1 THz, which can amplify picosecond pulses. However, the periodic frequency modulation of the gain spectrum generated by rotating energy-level spacing limits the amplification effect. In the time domain, a single input pulse splits into a series of pulses, which affects pulse extraction and energy amplification. Limited by the high-voltage pulse discharge pumping technology, the pressure cannot be infinitely increased to eliminate pulse splitting. The difference in quality of isotopes shifts the frequency of the central spectral line such that several discrete spectra are mixed into a smooth continuous spectrum, overcoming the periodic spectral modulation of the gain spectral line and amplifying picosecond pulses without generating secondary pulses.

Methods The output characteristics of a long-wave infrared picosecond pulse, amplified using a CO₂ amplifier, were numerically simulated. By fully considering the transitions of regular, sequence, and hot bands, the pumping/relaxation dynamics of the laser energy level were modeled. Spectral data were mainly obtained from the latest version of the HITRAN 2016 database. To determine the optimal isotope ratio, analyze the amplified output of different bands, and compare the influence of pressure broadening on pure ¹²C¹⁶O₂ and mixed isotopes, we calculate the output characteristics of ¹²C¹⁶O₂, ¹²C¹⁶O¹⁸O, ¹²C¹⁸O₂, ¹³C¹⁶O₂, ¹³C¹⁶O¹⁸O, ¹³C¹⁸O₂ under different ratios of six isotopes, the molecular number ratio of ¹²C¹⁶O₂, ¹²C¹⁶O¹⁸O, and ¹²C¹⁸O₂ is 1:2:1, at the four strong lines of 9R, 9P, 10R, and 10P bands and pure ¹²C¹⁶O₂ and ¹³C, ¹⁸O, both accounting for 50% at different pressures. Eventually, we simulated the output characteristics at 10 bar of the ultrashort pulse with a 0.3 ps pulse width, 1.466 THz bandwidth, and 0.01 J energy at 9 μm band passing through the gain medium where ¹³C and ¹⁸O account for 50% while ¹³C accounts for 0% and ¹⁸O accounts for 50%, and at 10 μm band passing through the gain medium where ¹³C and ¹⁸O account for 50% while ¹³C accounts for 100% and ¹⁸O accounts for 50%. The calculation results were analyzed and conclusions were drawn.

Results and Discussions When isotopes of 50% ¹³C and 50% ¹⁸O are added, no secondary pulse is generated; however, the output energy and peak power of the main pulse are the lowest. When the ratio of ¹³C to ¹⁸O is higher or lower than 50%, the output energy and peak power of the main pulse increased; however, the energy ratio of the main pulse decreased, and the number and energy ratio of the secondary pulses increased. This corresponds to the amplitude and modulation of the amplifier gain spectrum. Switching from the P- to the R-band has advantages: the peak power and energy ratio of the main pulse increase as well as the number of secondary pulses and their energy ratios decrease. The spectral line density of the R-band is 1.5 times that of the P-band. More gain overlaps result in higher gain and better smoothness. Increasing the gas pressure can increase the collision linewidth, gain overlap, output energy, and peak power; make the gain envelope smoother; and reduce the gain spectral modulation and pulse splitting. However, when no isotopes are added, the smoothing effect of pressure broadening on the gain spectrum is insignificant. Pulse splitting is completely suppressed only in the isotopic mixtures. When the ratios of ¹³C and ¹⁸O are 50% at 10 bar, the amplified energies of the 9 and 10 μm bands are close. At the 9 μm band, the gain spectrum range of ¹³C and ¹⁸O accounting for 50% is 0.533 THz wider than that of ¹³C accounting for 0% and ¹⁸O accounting for 50%; in contrast, at the 10 μm band, the gain spectrum range of ¹³C and ¹⁸O accounting for 50% is 0.094 THz wider than that of ¹³C accounting for 100% and ¹⁸O accounting for 50%. The pulse width of the six isotopes at 9 μm is reduced by 0.130 ps (28.14%), and the proportion of trailing energy is reduced by 46.37% compared with the three isotopes of ¹²C, while the pulse width of the six isotopes at 10 μm is reduced by 0.104 ps (23.26%) and the trailing energy proportion is reduced by 40.06% compared with the three isotopes of ¹³C (Fig. 7). Unlike Polyanskiy *et al.* who used the same seed passing through three isotopes of ¹²C with ¹⁸O accounting for 47% at the 9 μm band and obtained an amplified output pulse with a width of 0.5 ps, and energy tailing ratio of 25%, six isotope mixtures are used to expand the amplifier gain bandwidth, smooth the gain envelope, and obtain narrower pulse width and a lower tailing energy ratio after amplification.

Conclusions In this study, numerical simulations were conducted to investigate the output characteristics of six isotopic CO₂ lasers with different proportions of CO₂ isotopes, as well as different wavelengths and gas pressures. The results show that, under the condition of 50% ¹³C and ¹⁸O atom ratios and a pressure of 5 bar, the gain modulation near 10.591 μm is 19.65%, and the gain modulation of the R-band is reduced by about 40% compared to the P-band, effectively suppressing the output of secondary pulses. Under a pressure of 10 bar, for a seed light with a pulse width of 0.3 ps and energy of 0.01 J, the laser pulse width is 0.332 ps with a tail energy ratio of 1.85% after amplification by six isotopes of ¹²C and ¹³C in the 9 μm band and 0.343 ps with a tail energy ratio of 3.77% after amplification by six isotopes of ¹²C and ¹³C in the 10 μm band. Compared with the simulation results by Polyanskiy *et al.* who used three isotopes of ¹²C to amplify the same seed laser in the 9 μm band, the pulse laser width and tail energy ratio are reduced by 0.168 ps and 23.15%, respectively. The calculations and analyses in this study provide a reference for parameter selection for high-pressure isotopic CO₂ lasers.

Key words laser optics; CO₂ laser amplifier; CO₂ isotope; gain spectrum smoothing; picosecond pulse