BỘ GIÁO DỤC VÀ ĐÀO TẠO

VIỆN HÀN LÂM KHOA HỌC VÀ CÔNG NGHỆ VIỆT NAM

HỌC VIỆN KHOA HỌC VÀ CÔNG NGHỆ



NGUYỄN VĂN ĐIỆP

NGHIÊN CỨU ĐỘNG HỌC KHUẾCH ĐẠI XUNG LASER TỬ NGOẠI 280-320 NM VÀ ĐỊNH HƯỚNG ỨNG DỤNG TRONG QUAN TRẮC MÔI TRƯỜNG

LUẬN ÁN TIẾN SĨ QUANG HỌC MÃ SỐ: 9440110 BỘ GIÁO DỤC VÀ ĐÀO TẠO

VIỆN HÀN LÂM KHOA HỌC VÀ CÔNG NGHỆ VIỆT NAM

HỌC VIỆN KHOA HỌC VÀ CÔNG NGHỆ

NGUYỄN VĂN ĐIỆP

NGHIÊN CỨU ĐỘNG HỌC KHUẾCH ĐẠI XUNG LASER TỬ NGOẠI 280-320 NM VÀ ĐỊNH HƯỚNG ỨNG DỤNG TRONG QUAN TRẮC MÔI TRƯỜNG

Chuyên ngành: Quang học Mã sỗ: 9440110

LUẬN ÁN TIẾN SĨ QUANG HỌC

NGƯỜI HƯỚNG DẪN KHOA HỌC:

PGS.TS. Phạm Hồng Minh GS. TS. Nguyễn Đại Hưng.

MỤC LỤC

Lời cam đoan	iv
Lời cảm ơn	v
Bảng ký hiệu hoặc chữ cái viết tắt	vi
Danh mục các bảng biểu	viii
Danh mục các hình vẽ, biểu đồ	ix
Mở đầu	1
CHƯƠNG 1: VẬT LÝ VÀ CÔNG NGHỆ TRONG KHUẾCH ĐẠI L	ASER 5
1.1. Tổng quan về khuếch đại laser	5
1.1.1. Nguyên lý khuếch đại laser	5
1.1.2. Một số vấn đề vật lý trong khuếch đại laser	6
1.1.3. Cấu hình khuếch đại laser	11
1.1.4. Phương trình Franz-Nodvik cổ điển	15
1.2. Tổng quan về môi trường laser Ce:LiCAF	18
1.2.1. Môi trường fluoride pha tạp Cerium	18
1.2.2. Các đặc trưng của môi trường Ce:LiCAF	20
1.2.3. Hệ laser tử ngoại dựa trên tinh thể Ce:LiCAF	22
1.3. Úng dụng của laser tử ngoại	24
1.3.1. Ứng dụng trong gia công vật liệu, vi cơ khí	24
1.3.2. Ứng dụng trong nghiên cứu môi trường	25
Kết luận chương 1	30
CHƯƠNG 2: ĐỘNG HỌC PHỔ KHUẾCH ĐẠI CÁC XUNG LA	ASER TŮ
NGOẠI SỬ DỤNG TINH THẾ Ce:LiCAF	31
2.1. Cấu hình khuếch đại nhiều lần truyền qua sử dụng tinh thể Ce:I	LiCAF 31
2.2. Mô hình lý thuyết cho khuếch đại laser	
2.3. Thông số sử dụng trong mô phỏng	
2.3.1. Thông số của linh kiện và thiết bị quang	

2.3.2.	Tiết diện khuếch đại và hấp thụ của môi trường Ce:LiCAF39
2.4. Độn	<mark>g học khuếch đại xung laser tử ngoại sử dụng tinh thể Ce:LiCAF</mark> 40
2.4.1.	Sự thay đổi của nghịch đảo độ tích lũy trong quá trình bơm và khuếch đại . 41
2.4.2.	Ảnh hưởng của công suất laser bơm lên công suất laser sau khuếch đại 42
2.4.3.	Ảnh hưởng của công suất laser tín hiệu lên công suất laser sau khuếch đại44
2.4.4.	Ảnh hưởng của bước sóng laser tín hiệu lên công suất laser sau khuếch đại45
2.4.5.	Ảnh hưởng của độ rộng phổ laser tín hiệu lên phổ laser sau khuếch đại .47
2.4.6.	Dịch đỉnh phổ laser tín hiệu trong quá trình khuếch đại49
Kết lu	ận chương 2 52
CHƯƠN	G 3: KHUẾCH ĐẠI XUNG LASER TỬ NGOẠI SỬ DỤNG TINH
	THỂ Ce:LiCAF
3.1. Phát	t triển hệ khuếch đại xung laser tử ngoại băng rộng sử dụng tinh thể
Ce:I	LiCAF
3.1.1.	Cấu hình hệ khuếch đại53
3.1.2.	Đặc trưng phát xạ của hệ laser tín hiệu Ce:LiCAF sử dụng cấu hình buồng
	cộng hưởng Fabry-Perot56
3.1.3.	Khuếch đại xung laser tử ngoại băng rộng sử dụng tinh thể Ce:LiCAF 58
3.2. Phát	t triển hệ khuếch đại xung laser tử ngoại băng hẹp sử dụng tinh thể
Ce:I	LiCAF
3.2.1.	Cấu hình hệ khuếch đại61
3.2.2.	Laser tín hiệu băng hẹp sử dụng cấu hình buồng cộng hưởng Littrow62
3.2.3.	Laser tín hiệu băng hẹp sử dụng cấu hình buồng cộng hưởng Littman65
3.2.4.	Khuếch đại xung laser tử ngoại băng hẹp sử dụng tinh thể Ce:LiCAF .71
Kết luận	chương 3

CHƯƠNG 4: ỨNG DỤNG LASER TỬ NGOẠI Ce:LiCAF TR	ONG QUAN
TRAC MOI TRUONG	76
4.1. Phát triển hệ quang phổ hấp thụ vi sai xác định mật độ khí	SO ₂ 76
4.1.1. Hệ quang phổ hấp thụ vi sai ứng dụng laser tử ngoại Ce:Li	<i>CAF</i> 76
4.1.2. Đo mật độ khí SO ₂ bằng hệ quang phổ hấp thụ vi sai	78
4.2. Nghiên cứu đặc trưng tán xạ của một số hạt sol khí bằng l	aser tử ngoại
điều chỉnh bước sóng Ce:LiCAF	79
4.2.1. Thông số sử dụng trong mô phỏng	80
4.2.2. Ảnh hưởng của kích thước hạt lên đặc trưng tán xạ theo gó	<i>c</i> 81
4.2.3. Ảnh hưởng của bước sóng kích thích đến tán xạ ngược	83
Kết luận chương 4	85
KẾT LUẬN CHUNG	86
DANH MỤC CÁC CÔNG TRÌNH CÔNG BỐ LIÊN QUAN ĐẾN LI	U ẬN ÁN 88
TÀI LIỆU THAM KHẢO	90
PHŲ LŲC	101
A. Tiết diện hấp thụ và phát xạ của Ce:LiCAF	101
B. Chương trình mô phỏng khuếch đại	103
C. Chương trình mô phỏng động học phát đồng thời 2 bước	sóng 106

LỜI CAM ĐOAN

Tôi xin cam đoan đây là công trình nghiên cứu của riêng tôi. Các số liệu, kết quả trong luận án là trung thực và chưa được ai công bố trong bất cứ luận án hoặc công trình nào khác.

LỜI CẢM ƠN

Luận án được thực hiện tại Khoa Vật lý, Học viện KH&CN và Trung tâm Điện tử học Lượng tử, Viện Vật lý, Viện Hàn lâm KH&CN Việt Nam dưới sự hướng dẫn khoa học của PGS. TS. Phạm Hồng Minh và GS. TS. Nguyễn Đại Hưng.

Trước hết, tôi xin bày tỏ lòng biết ơn sâu sắc đến PGS. TS. Phạm Hồng Minh, người thầy trực tiếp dẫn dắt tôi hoàn thành luận văn thạc sỹ và tiếp tục hướng dẫn tôi trong quá trình làm nghiên cứu sinh. Thầy luôn sát sao chỉ bảo và tạo mọi điều kiện thuận lợi nhất cho tôi trong suốt thời gian thực hiện luận án.

Tôi xin gửi lời cảm ơn chân thành tới GS. TS. Nguyễn Đại Hưng, thầy đã luôn quan tâm, chỉ bảo tận tình, định hướng nghiên cứu khoa học và động viên trong suốt quá trình học tập.

Tôi xin trân trọng cảm ơn Học viện KH&CN, Viện Hàn lâm KH&CN Việt Nam đã tận tâm hỗ trợ trong suốt thời gian nghiên cứu và thực hiện luận án.

Tôi xin chân thành cảm ơn các Thầy, Cô, các Anh/Chị tại Viện Vật lý nơi tôi học tập, đã hỗ trợ, hướng dẫn và giúp đỡ để tôi hoàn thành bản luận án này.

Tôi xin chân thành cảm ơn trường SQLQ 1, Đoàn 871, Bộ Quốc phòng đã tạo điều kiện, hỗ trợ cho tôi trong suốt thời gian học tập và nghiên cứu.

Tôi xin cảm ơn đề tài Quỹ nghiên cứu cơ bản và phát triển công nghệ quốc gia (NAFOSTED), mã số: 103.03-2019.365 đã hỗ trợ một phần kinh phí để tôi thực hiện luận án.

Cuối cùng, tôi gửi lời cảm ơn tới gia đình, những người luôn yêu thương, tin tưởng, cổ vũ và động viên trong quá trình học tập.

Hà Nội, ngày tháng năm 2023

BẢNG KÝ HIỆU HOẶC CHỮ CÁI VIẾT TẮT

UV	Tử ngoại					
BCH	Buồng cộng hưởng					
ESA	Hấp thụ ở trạng thái kích thích					
ASE	Phát xạ tự phát					
N_0	Số ion ở trạng thái cơ bản					
N_{l}	Số ion ở trạng thái kích thích					
Ν	Tổng số ion tham gia vào quá trình phát laser					
С	Vận tốc ánh sáng					
h	Hằng số Planck					
l	Chiều dài môi trường hoạt chất					
R	Hệ số phản xạ của gương					
R _G	Hệ số phản xạ của cách tử					
d	Hằng số cách tử					
l _{ct}	Chiều dài hiệu dụng của cách tử					
L	Chiều dài buồng cộng hưởng					
λ	Bước sóng laser					
$\Delta\lambda$	Độ rộng phổ					
I_i	Cường độ laser trong buồng cộng hưởng tại bước sóng λ_i					
R_p	Tốc độ bơm					
σ_{ai}	Tiết diện hấp thụ tại bước sóng λ_i					
σ_{ei}	Tiết diện phát xạ tại bước sóng λ_i					
A_i	Hệ số phát xạ tự phát tại bước sóng λ_i					
γ	Hệ số mất mát trong buồng cộng hưởng					
τ	Thời gian sống huỳnh quang					
P_{abs}	Công suất laser bơm được hấp thụ					
P _{pump}	Công suất laser bom					
P_{in}	Công suất laser tín hiệu					

α	Hệ số hấp thụ của môi trường hoạt chất
$ au_p$	Độ rộng xung bơm
r	Bán kính vết bơm

-
- θ_{β} Góc Brewster
- β Hệ số nghịch đảo độ tích lũy
- σ_g Tiết diện khuếch đại
- G_i Độ khuếch đại tại lát cắt thứ i
- J Thông lượng
- *L'* Chiều dài khuếch đại hiệu dụng
- Ψ Góc giữa chùm laser bơm và chùm laser tín hiệu
- *n* Chiết suất môi trường
- *n*₁ Chiết suất tuyến tính
- *n*₂ Chiết suất phi tuyến

DANH MỤC CÁC BẢNG BIỂU

Bảng 1.1.	Một số môi trường khuếch đại phổ biến			
Bång 1.2.	Vùng quang phổ hấp thụ của một số chất khí	22		
Bång 2.1.	Các thông số linh kiện và thiết bị sử dụng trong mô phỏng	38		
Bảng 2.2.	Công suất laser sau khuếch đại và hệ số khuếch đại ở các bước sóng laser tín hiệu khác nhau	47		
Bång 3.1.	Các thông số của môi trường Ce:LiCAF và linh kiện quang học sử dụng cho hệ khuếch đại	55		
Bảng 3.2.	Thông số xung laser tín hiệu và xung laser sau khuếch đại (hệ khuếch đại các xung laser băng rộng).	59		
Bång 3.3.	Thông số xung laser tín hiệu và xung laser sau khuếch đại (Hệ khuếch đại các xung laser tử ngoại băng hẹp)	72		
Bång 4.1.	Chiết suất phức của nước ô nhiễm, carbon nâu và carbon đen đối với hai bức xạ laser kích thích 532 nm và 288,5 nm	80		
Bảng 4.2.	Hệ số kích thước hạt được xác định theo bước sóng	81		

DANH MỤC CÁC HÌNH VĨ, BIỂU ĐỒ

Trang

Hình 1.1.	Nguyên lý khuếch đại laser				
Hình 1.2.	Sơ đồ nguyên lý một bộ khuếch đại laser				
Hình 1.3.	Cấu hình bơm a). Bơm ngang. b). Bơm dọc				
Hình 1.4.	Biên dạng cường độ của chùm laser tới (màu đỏ) và biên dạng nhiệt (màu xanh lam) trong tinh thể Nd:YAG				
Hình 1.5.	Sự biến dạng của xung laser sau mỗi lần khuếch đại	10			
Hình 1.6.	Sơ đồ hệ khuếch đại một tầng truyền qua Nd:YVO4	12			
Hình 1.7.	Sơ đồ hệ khuếch đại nhiều tầng truyền qua Nd:YVO4	13			
Hình 1.8.	Sơ đồ hệ khuếch đại tái phát Yb:Sr F_2	14			
Hình 1.9.	Sơ đồ hệ khuếch đại nhiều lần truyền qua	15			
Hình 1.10.	Sơ đồ hệ khuếch đại nhiều lần truyền qua sử dụng các gương 1.10. cầu đồng tiêu				
Hình 1.11.	Sơ đồ cấu trúc mức năng lượng và chuyển dời quang học của ion Ce ³⁺ trong nền Fluoride	19			
Hình 1.12.	Cấu trúc mạng tinh thể của chất nền LiCAF	20			
Hình 1.13.	Phổ hấp thụ và phát xạ của môi trường Ce:LiCAF	21			
Hình 1.14.	Chiết suất phi tuyến (n2) của các vật liệu Fluoride trong vùng bước sóng tử ngoại	22			
Hình 1.15.	(a) Hệ laser Ce:LiCAF điều chỉnh bước sóng sử dụng tấm etalon. (b) Vùng điều chỉnh bước sóng với các tấm etalon có độ dày khác nhau	22			
Hình 1.16.	Sơ đồ hệ khuếch đại laser Ce:LiCAF công suất cao hai lần truyền qua	23			

Hình 1.17.	Laser UV khắc trên các vật liệu (a) Nhựa PI. (b) Nhựa epoxy. I nh 1.17. (c) Nhựa PI kết hợp nhựa epoxy. (d) Nhựa acrylic kết hợp nhựa			
	PI, (c) kim cương			
Hình 1.18.	So sánh vết cắt của laser hồng ngoại và tử ngoại	25		
Hình 1.19.	Hệ laser tử ngoại Ce:LiCAF ứng dụng cho Lidar nghiên cứu khí quyển			
Hình 1.20.	(a) Vùng điều chỉnh bước sóng của laser Ce:LiCAF và (b). Kết quả đo của hệ Lidar ngày 31 tháng 1 năm 2014 tại Mỹ	27		
Hình 1.21.	(a) Sơ đồ minh họa 2D và (b) 3D thiết bị đo cường độ tán xạ Mie theo góc	28		
Hình 1.22.	Cường độ tán xạ theo thời gian của các hạt sol khí	29		
Hình 2.1.	Cấu hình hệ khuếch đại các xung laser UV nhiều lần truyền qua sử dụng tinh thể Ce:LiCAF.	31		
Hình 2.2.	Sơ đồ khối khuếch đại laser theo mô hình (a). Frantz-Nodvik lì nh 2.2. cổ điển và (b). Frantz-Nodvik mở rộng			
Hình 2.3.	Mô phỏng quá trình khuếch đại laser tín hiệu một lần truyền qua	36		
Hình 2.4.	Sơ đồ khối quá trình mô phỏng khuếch đại xung laser	37		
Hình 2.5.	Hình 2.5. Tiết diện khuếch đại hoặc hấp thụ của môi trường Ce:LiCAF σ các giá trị β khác nhau.			
Hình 2.6.	Ảnh hưởng của công suất bơm lên hệ số nghịch đảo độ tích lũy	40		
Hình 2.7.	a) Nghịch đảo độ tích lũy sau mỗi lần khuếch đại. b). Hệ số nghịch đảo độ tích lũy trong tầng lần khuếch đại P _{in} =10 ⁻² mW	41		
Hình 2.8.	Ånh hưởng của công suất bơm lên công suất laser sau khuếch đại P _{in} =1 mW, λ=288,5 nm, FWHM=1 nm, P _{pump} = 120, 160, 200 mW	43		

Hình 2.9.	Ånh hưởng của công suất laser tín hiệu lên (a). Công suất laser sau khuếch đại và (b). Hệ số khuếch đại P _{in} =10 ⁻² mW, 1 mW, 4 30 mW, λ=288,5 nm, FWHM=1 nm.				
Hình 2.10.	Ảnh hưởng của bước sóng laser tín hiệu lên công suất laser sau khuếch đại, P _{in} =1 mW, FWHM=1 nm, λ=288,5, 295, 300 và 312 nm				
Hình 2.11.	(a). Phổ chuẩn hóa của laser tín hiệu và laser sau 8 lần khuếch đại. (b). Phổ laser tín hiệu và phổ laser sau từng lần khuếch đại, P _{in} =1 mW, P _{pump} = 160 mW, FWHM=10 nm	48			
Hình 2.12.	Phổ laser sau từng lần khuếch đại, P _{in} =1 mW, P _{pump} = 160 mW, λ=288,5 nm, FWHM=1 nm, 3 nm, 5 nm, 7 nm, 10 nm	49			
Hình 2.13.	Hiệu tượng thu hẹp phổ trong quá trình khuếch đại, $P_{in}=1$ mW, $\lambda=292$ nm, FWHM=10 nm, $P_{pump}=160$ mW				
	phổ laser sau từng lần khuếch đại P _{in} = 1 mW, λ=292 nm, FWHM=10 nm, P _{pump} =160 mW	51			
Hình 3.1.	Sơ đồ hệ phát và khuếch đại các xung laser tử ngoại, băng rộng, bốn lần truyền qua sử dụng tinh thể Ce:LiCAF	54			
Hình 3.2.	Hệ laser UV Ce:LiCAF sử dụng cấu hình BCH Fabry-Perot.	56			
Hình 3.3.	Sự phụ thuộc của công suất laser ra vào công suất laser bơm (cấu hình BCH Fabry-Perot)	57			
Hình 3.4.	(a) Độ rộng xung và (b) độ rộng phổ laser lối ra (cấu hình BCH Fabry-Perot)				
Hình 3.5.	Tình 3.5. Từnh 3.5.				
Hình 3.6.	(a) Độ rộng xung và (b) độ rộng phổ laser sau khuếch đại.	59			
Hình 3.7.	Kết quả mô phỏng và thực nghiệm khuếch đại các xung laser băng rộng	60			

Hình 3.8.	Sơ đồ hệ khuếch đại các xung laser tử ngoại, băng rộng, bốn lần truyền qua sử dụng tinh thể Ce:LiCAF.				
Hình 3.9.	Sơ đồ hệ laser Ce:LiCAF sử dụng cấu hình BCH Littrow.				
Hình 3.10.	Hệ laser Ce:LiCAF sử dụng cấu hình BCH Littrow.	63			
Hình 3.11.	Sự phụ thuộc của công suất laser lối ra vào công suất laser bơm (cấu hình BCH Littrow).	63			
Hình 3.12.	(a) Độ rộng xung và (b) độ rộng phổ laser lối ra (cấu hình BCH Littrow).	64			
Hình 3.13.	Các bức xạ nằm trong dải điều chỉnh bước sóng của laser Ce:LiCAF cấu hình BCH Littrow. (a) bước sóng ngắn nhất trong dải điều chỉnh 285 nm, (b) bước sóng tại đỉnh phát xạ 288,5 nm (c) bước sóng 292 nm và (d) bước sóng dài nhất trong dải điều chỉnh 296 nm.	65			
Hình 3.14.	Sơ đồ hệ laser Ce:LiCAF sử dụng cấu hình BCH Littman.	66			
Hình 3.15.	Hệ laser Ce:LiCAF sử dụng cấu hình BCH Littman.	67			
Hình 3.16.	(a) Độ rộng xung và (b) độ rộng phổ lối ra (cấu hình BCH Littman).	68			
Hình 3.17.	Các bức xạ nằm trong dải điều chỉnh của laser Ce:LiCAF cấu hình BCH Littman. (a) bước sóng ngắn nhất trong dải điều chỉnh 286 nm, (b) bước sóng đỉnh phát xạ 288,5 nm,(c) bước sóng nằm trong dải điều chỉnh 289 nm, (d) bước sóng dài nhất trong dải điều chỉnh 290,5 nm.	69			
Hình 3.18.	Sơ đồ hệ laser tử ngoại Ce:LiCAF phát đồng thời hai bức xạ băng hẹp.	70			
Hình 3.19.	(a). Tiến trình phổ 3D và hai bức xạ UV băng hẹp tại bước sóng (b) 289,7 nm và (c) 290,0 nm thu nhận đồng thời.	71			
	Hà nhát và khuẩch đại các xung lasar tử ngoại hằng hạn				

Hình 3.20.Hệ phát và khuếch đại các xung laser tử ngoại băng hẹp
bốn lần truyền qua sử dụng tinh thể Ce:LiCAF.72

Hình 3.21.	(a) Độ rộng xung và (b) độ rộng phổ laser sau khuếch đại 7			
Hình 3.22.	Kết quả mô phỏng và thực nghiệm khuếch đại các xung laser băng hẹp.			
Hình 4.1.	Sơ đồ hệ thí nghiệm khảo sát nồng độ khí SO2 bằng kĩ thuật quang phổ hấp thụ vi sai	77		
Hình 4.2.	Hệ thí nghiệm khảo sát nồng độ khí SO2 bằng kĩ thuật quang phổ hấp thụ vi sai.	78		
Hình 4.3.	Phổ laser thu được trong hai trường hợp khi bình chứa khí và không chứa khí SO2	79		
Hình 4.4.	Cường độ tán xạ theo góc của các hạt carbon đen, carbon nâu và nước ô nhiễm với kích thước khác nhau	82		
Hình 4.5.	Sự phụ thuộc của cường độ tán xạ ngược của hạt carbon đen, carbon nâu và nước ô nhiễm có kích thước 0,4 µm vào bước sóng laser kích thích lên	83		

xiii

MỞ ĐẦU

Laser tử ngoại (laser UV) nói chung và laser UV công suất cao nói riêng đóng một vai trò quan trọng trong khoa học, công nghệ và đời sống. Các nguồn laser UV đã được ứng dụng nhiều trong các lĩnh vực như: gia công vật liệu, vi cơ khí, kĩ thuật viễn thám, y học, sinh học, quang phổ và nghiên cứu môi trường [1-6].

Các hạt sol khí trong khí quyển có kích thước từ nano-mét tới micro-mét, hạt sol khí có kích thước lớn thường dễ dàng lắng đọng xuống các bề mặt trong khi các hạt nhỏ hơn như carbon đen, carbon nâu, nước ô nhiễm,... sẽ khuếch tán trong khí quyển trên một phạm vi rộng và trong một quãng thời gian dài. Do vậy, các hạt có kích thước nhỏ thường chiếm một tỉ lệ lớn trong phân bố theo kích thước của các hạt trong khí quyển. Theo báo cáo tại một số thành phố lớn thuộc Châu Á, các hạt sol khí có đường kính nhỏ hơn 2,5 μ m (PM 2.5) chiếm tỉ lệ hơn 98% tổng số hạt sol khí [7-10]. Việc nghiên cứu đặc trưng quang học của các hạt sol khí có kích thước nhỏ này đòi hỏi các nguồn laser hoạt động trong vùng bước sóng ngắn. Ngoài ra, một số chất khí ô nhiễm có phổ hấp thụ nằm trong vùng bước sóng UV như O₃ (300 nm \div 330 nm), SO₂ (320 nm \div 340 nm), CS₂ (320 nm \div 340 nm), Cl₂ (260 nm \div 300 nm),... [10]. Do vậy, các nguồn laser UV đã được tích hợp vào các thiết bị nghiên cứu khí quyển như: máy đếm và đo kích thước hạt, máy phân tích sol khí, máy quang phổ Raman và các kĩ thuật viễn thám như LDV (laser Doppler velocimeters), LIDAR (light detection and ranging),... [10-12].

Các nguồn laser UV thương mại chủ yếu là các laser excimer như KrF (248 nm), XeCl (308 nm), XeF (351 nm),... hoặc các laser UV thu được bằng việc biến đổi tần số. Tuy nhiên, hạn chế lớn nhất của các laser excimer là không có khả năng điều chỉnh bước sóng, hiệu suất biến đổi điện - quang thấp, trong khi đó các laser biến đổi tần số thường có hiệu suất chuyển đổi năng lượng thấp và phụ thuộc vào tinh thể phi tuyến [13, 14].

Nghiên cứu và phát triển các nguồn laser toàn rắn phát trực tiếp bức xạ UV sử dụng tinh thể Fluoride pha tạp ion đất hiếm Cerium (Ce: Fluoride) đã và đang được nhiều nhà khoa học, viện nghiên cứu trên thế giới quan tâm [15-22]. Trong các môi trường laser Ce:Fluoride, môi trường Ce:LiCAF đã được chứng minh là môi trường laser với nhiều ưu điểm vượt trội như đỉnh phổ hấp thụ mạnh tại bước sóng 266 nm

phù hợp với bơm quang bằng họa ba bậc bốn của laser Nd³⁺. Phổ phát xạ rộng 40 nm từ 280 nm đến 320 nm phù hợp cho phát triển các nguồn laser UV điều chỉnh bước sóng, xung ngắn. Mật độ năng lượng bão hòa cao (115 mJ/cm²) và ngưỡng phá hủy lớn (5 J/cm²) phù hợp cho việc phát triển các nguồn laser UV công suất cao [23-28].

Trên thế giới, laser UV Ce:LiCAF đã và đang được phát triển theo các hướng nghiên cứu chính sau: vật liệu laser, công nghệ laser và ứng dụng. Việc phát triển các phương pháp nuôi tinh thể như Micro pulling down, Czochralski và Bridgman đã được nghiên cứu tại Viện Vật liệu thuộc Đại học Tohoku - Nhật Bản [29, 30]. Bằng việc sử dụng lăng kính tán sắc trong BCH, các nhà nghiên cứu tại Đại học Osaka - Nhật Bản đã phát bức xạ laser UV với độ rộng phổ 0,2 nm và điều chỉnh liên tục từ 281 nm đến 315 nm [19]. Hệ laser UV Ce:LiCAF phát bức xạ băng hẹp xuống tới 14 pm và điều chỉnh liên tục bước sóng trên dải phổ từ 284 nm đến 298 nm bằng cách sử dụng các tấm etalon trong BCH cũng đã được phát triển tại Đại học Macquarie Sydney - Úc [31]. Hơn nữa, việc ứng dụng các nguồn laser UV băng hẹp Ce:LiCAF vào kĩ thuật Lidar nghiên cứu khí quyển cũng đã được thực hiện tại trung tâm nghiên cứu NASA Langley của Mỹ [32].

Trước những kết quả khoa học và công nghệ về laser mang tính cách mạng của thế giới, việc nghiên cứu phát triển laser UV và ứng dụng nguồn laser này trong nghiên cứu cũng đã được nhiều nhà khoa học trong nước quan tâm. Gần đây, hệ laser màu phát bức xạ UV dựa trên phương pháp nhân tần số, ứng dụng trong hệ Lidar đã được nghiên cứu và phát triển thành công tại Viện Vật lý, Viện Hàn lâm Khoa học Công nghệ Việt Nam [33]. Tuy nhiên, việc sử dụng tinh thể phi tuyến để chuyển đổi tần số từ vùng bước sóng nhìn thấy sang vùng UV dẫn tới năng lượng laser lối ra nhỏ chỉ cỡ vài đến vài chục µJ. Do vậy, hệ Lidar sử dụng nguồn laser này làm nguồn kích chỉ khảo sát được khí quyển tầng thấp. Hơn nữa, môi trường phát và khuếch đại là chất màu Rhodamine 6G có thể gây độc hại tới môi trường và người sử dụng.

Các nghiên cứu về laser toàn rắn phát trực tiếp bức xạ UV sử dụng tinh thể Ce:LiCAF cũng đã được thực hiện. Bằng việc sử dụng cấu hình BCH Fabry-Perot, năng lượng laser lối ra thu được cỡ mJ ở bước sóng 290 nm. Với việc sử dụng cấu hình BCH Littrow cũng như phương pháp quá độ BCH, các xung laser UV ngắn (subnano giây) có khả năng điều chỉnh bước sóng cũng đã được nghiên cứu và phát triển thành công [34, 35]. Tuy nhiên việc ứng dụng các nguồn laser này vẫn bị hạn chế do năng lượng laser lối ra dưới ngưỡng của nhiều ứng dụng. Do vậy, việc khuếch đại các xung laser này là hết sức cần thiết.

Trên thế giới các hệ khuếch đại trực tiếp bức xạ laser UV sử dụng tinh thể Ce:LiCAF cũng đã được nghiên cứu và phát triển [36-38]. Tuy nhiên, các nghiên cứu này mới chỉ tập trung vào nghiên cứu thực nghiệm mà chưa có các nghiên cứu lý thuyết. Gần đây dựa trên phương trình Frantz-Nodvik cổ điển, nhóm nghiên cứu của giáo sư Peter Kroetz (Viện nghiên cứu Max-Planck, Đức) đã xây dựng thành công phương trình Frantz-Nodvik mở rộng cho toàn miền phổ trong khuếch đại laser. Bằng việc sử dụng phương trình này, các đặc trưng về phổ của laser Ho:YLF trong bộ khuếch đại nhiều lần truyền qua đã được nghiên cứu tường minh [39].

Từ các phân tích trên, việc nghiên cứu, phát triển hệ phát cũng như hệ khuếch đại các xung laser UV sử dụng tinh thể Ce:LiCAF là cần thiết. Xuất phát từ các yêu cầu đó, tôi chọn đề tài "Nghiên cứu động học khuếch đại xung laser tử ngoại 280-320 nm và định hướng ứng dụng trong quan trắc môi trường" làm hướng nghiên cứu chính cho luận án tiến sĩ của mình.

Mục tiêu của luận án bao gồm:

- Nghiên cứu động học phổ khuếch đại các xung laser UV sử dụng tinh thể Ce:LiCAF.
- Phát triển hệ thực nghiệm laser phát xung tín hiệu và hệ khuếch đại các xung laser UV sử dụng tinh thể Ce:LiCAF. Đánh giá đặc trưng của xung laser tín hiệu và xung laser sau khuếch đại.
- Bước đầu ứng dụng các nguồn laser UV Ce:LiCAF đã phát triển vào nghiên cứu, quan trắc môi trường.

Phương pháp nghiên cứu:

Luận án được thực hiện đồng thời bằng nghiên cứu lý thuyết và thực nghiệm. Động học khuếch đại các xung laser UV sử dụng tinh thể Ce:LiCAF sẽ được nghiên cứu dựa trên phương trình khuếch đại Frantz-Nodvik mở rộng. Các kết quả nghiên cứu mô phỏng tối ưu được sử dụng trong việc thiết kế và phát triển hệ thực nghiệm.

Dựa trên các kết quả nghiên cứu mô phỏng cũng như trang thiết bị hiện có tại Viện Vật lý, phát triển hệ phát và hệ khuếch đại các xung laser UV bốn lần truyền

qua sử dụng tinh thể Ce:LiCAF. Đánh giá các đặc trưng xung laser tín hiệu và xung laser sau khuếch đại.

Cường độ tán xạ theo góc của một số hạt sol khí phổ biến trong khí quyển sẽ được nghiên cứu bằng laser UV Ce:LiCAF điều chỉnh bước sóng. Bên cạnh đó, bức xạ laser UV Ce:LiCAF cũng sẽ được ứng dụng trong hệ quang phổ hấp thụ vi sai xác định nồng độ khí SO₂.

Từ các nội dung nghiên cứu, luận án được trình bày trong 4 chương:

Chương 1: Vật lý và công nghệ trong khuếch đại laser tử ngoại Chương 2: Động học phổ khuếch đại các xung laser tử ngoại sử dụng tinh thể Ce:LiCAF

Chương 3: Khuếch đại các xung laser tử ngoại sử dụng tinh thể Ce:LiCAF Chương 4: Ứng dụng laser tử ngoại Ce:LiCAF trong quan trắc môi trường

Nội dung của luận án được thực hiện tại Khoa Vật lý, Học viện KH&CN và Trung tâm Điện tử học Lượng tử - Viện Vật lý, Viện Hàn lâm KH&CN Việt Nam, dưới sự hướng dẫn khoa học của PGS. TS. Phạm Hồng Minh và GS. TS. Nguyễn Đại Hưng.

CHƯƠNG 1

VẬT LÝ VÀ CÔNG NGHỆ TRONG KHUẾCH ĐẠI LASER

Chương 1 trình bày tổng quan về khuếch đại laser bao gồm nguyên lý khuếch đại và các vấn đề vật lý trong khuếch đại laser. Tổng hợp và phân tích đặc trưng của môi trường tinh thể cũng như các cấu hình khuếch đại đã được phát triển cho môi trường tinh thể Ce:LiCAF. Bên cạnh đó, một số ứng dụng của laser UV trong gia công vật liệu, vi cơ khí và trong nghiên cứu môi trường cũng đã được tìm hiểu và trình bày [40, 41].

1.1. Tổng quan về khuếch đại laser 1.1.1. Nguyên lý khuếch đai laser

Nguyên lý khuếch đại laser dựa trên hiện tượng phát xạ cưỡng bức, được chỉ ra trên Hình 1.1. Quá trình bơm sẽ kích thích các ion ở trạng thái cơ bản (E_1) lên trạng thái kích thích (E_2), các ion sau đó sẽ chuyển rời do va chạm về mức năng lượng thấp nhất của trạng thái E_2 . Phát xạ cưỡng bức xảy ra khi môi trường đạt trạng thái nghịch đảo độ tích lũy và photon có năng lượng đúng bằng hiệu hai mức năng lượng E_2 và E_1 đi qua môi trường khuếch đại. Các photon mới sinh ra và photon ban đầu có cùng phương truyền, cùng pha và cùng tần số hay nói cách khác quá trình khuếch đại laser được thực hiện [13, 14].



Hình 1.1. Nguyên lý khuếch đại laser [14].

Nhiệm vụ của một bộ khuếch đại laser là khuếch đại về mặt năng lượng xung laser tín hiệu. Về cấu tạo, một bộ khuếch đại laser gồm hai thành phần cơ bản có mối quan hệ mật thiết với nhau là môi trường khuếch đại và nguồn bơm (Hình 1.2), các đặc trưng quang học của hai thành phần này sẽ ảnh hưởng lớn đến khả năng khuếch đại cũng như đặc trưng của xung laser sau khuếch đại [13].



Hình 1.2. Sơ đồ nguyên lý một bộ khuếch đại laser [14].

Môi trường khuếch đại hay môi trường hoạt chất có khả năng khuếch đại các bức xạ đi qua nó. Các môi trường khuếch đại laser có thể phân loại thành ba nhóm chính là các môi trường khí (CO₂, N₂, XeCl, XeF...), môi trường lỏng (các dung dịch hữu cơ, chất lỏng chelaste,...) và môi trường rắn (tinh thể Ti-sapphire, các tinh thể pha tạp ion đất hiếm Nd³⁺, Ce³⁺, Er³⁺,...) hoặc phân loại dựa trên nguyên lý làm việc ba hay bốn mức năng lượng. Việc lựa chọn môi trường khuếch đại sẽ phụ thuộc vào thông số của laser tín hiệu cần khuếch đại [13].

Để cung cấp năng lượng cho các tâm hoạt chất là các điện tử, phân tử hay ion của môi trường khuếch đại chuyển từ trạng thái cơ bản lên trạng thái kích thích đòi hỏi phải có nguồn năng lượng từ bên ngoài (nguồn bơm). Việc lựa chọn nguồn bơm sẽ phụ thuộc vào đặc trưng hấp thụ của môi trường khuếch đại. Quá trình bơm có thể thực hiện theo các cơ chế như bơm quang học, bơm nhờ va chạm không đàn hồi với điện tử tự do, bơm hóa học, bơm nhiệt,...[13].

1.1.2. Một số vấn đề vật lý trong khuếch đại laser

Môi trường khuếch đại: các thông số tiết diện phát xạ và hấp thụ của môi trường khuếch đại sẽ xác định hệ số khuếch đại ban đầu và thông lượng bão hòa. Nếu không có hiện tượng phát xạ tự phát (ASE), thời gian lưu giữ năng lượng trong môi trường khuếch đại được xác định bởi thời gian sống của ion ở trạng thái kích thích.

Tuy nhiên, khoảng thời gian này có thể rút ngắn đáng kể khi ASE xuất hiện. Do vậy, các thông số cần quan tâm đối với môi trường khuếch đại bao gồm: tiết diện khuếch đại và hấp thụ tại bước sóng laser tín hiệu; Thời gian sống huỳnh quang; Năng lượng bão hòa tại bước sóng laser bơm và bước sóng laser tín hiệu. Bên cạnh đó, ngưỡng phá hủy của môi trường khuếch đại ở bước sóng laser bơm và bước sóng laser tín hiệu cũng cần được đặc biệt quan tâm.

	Bước sóng	Độ rộng	Thời gian	Norràn have
Moi trường	(nm)	phổ (nm)	sống (s)	Inguon bom
XeCl	308	1,5	~10-8	Phóng điện
XeF	351	≤ 2	~10-8	Phóng điện
KrF	249	~ 2	≤10 ⁻⁸	Phóng điện
Rhodamine 6G	~578	~ 50	5x10 ⁻⁹	Laser (532 nm)
Fluorescein	550	~ 30	4x10 ⁻⁹	Laser (532 nm)
Coumarin	448	~ 30	5x10 ⁻⁹	Laser (355 nm)
Ti:sapphire	780	~ 400	10-6	Laser (514-532 nm)
Nd:thủy tinh	1064	~ 21	3x10 ⁻⁴	Đèn flash
Er:thủy tinh	1530	~ 180	12x10 ⁻³	Laser (980 nm)

Bảng 1.1. Một số môi trường khuếch đại phổ biến [13, 14].

Trên Bảng 1.1 là thông tin về một số môi trường khuếch đại laser phổ biến. Các môi trường laser khí Excimer như XeCl, XeF, KrF... có đặc điểm là tiết diện khuếch đại lớn, hoạt động được trong vùng bước sóng tử ngoại. Các môi trường laser dạng lỏng phổ biến như Rhodamine 6G, Fluorescein, Coumarin... đặc điểm chung của các môi trường này là tiết diện phát xạ lớn, phổ phát xạ rộng (\geq 30 nm) và hoạt động chủ yếu ở vùng bước sóng nhìn thấy. Tuy nhiên, các môi trường này có nhược điểm là thời gian sống huỳnh quang ngắn (\leq 10 ns), thông lượng bão hòa thấp nên năng lượng đạt được là không cao. Hơn nữa, chất màu thường độc hại cho người sử dụng và môi trường. Các môi trường laser rắn (Ti-sapphire, các tinh thể pha tạp ion đất hiếm Nd³⁺, Er³⁺,...) có đặc điểm là tiết diện phát xạ lớn, thông lượng bão hòa cao, tuy nhiên các nguồn laser rắn chủ yếu hoạt động ở vùng hồng ngoại gần. Nguồn bơm và cấu hình bơm: nguồn bơm có nhiệm vụ cung cấp năng lượng từ bên ngoài cho môi trường hoạt chất, phần năng lượng được hấp thụ giúp các tâm hoạt chất là các điện tử, phân tử hay ion của môi trường hoạt chất chuyển từ trạng thái cơ bản lên trạng thái kích thích và tạo ra nghịch đảo mật độ độ tích lũy. Việc lựa chọn nguồn bơm sẽ phụ thuộc vào các đặc điểm của môi trường hoạt chất, phần lớn các môi trường laser dạng khí được bơm bằng điện, trong khi đó các laser màu được bơm quang học bằng các laser khí hoặc các laser rắn biến đổi tần số sang vùng bước sóng UV hoặc nhìn thấy. Các laser rắn chủ yếu được bơm quang học bằng đèn flash phát bức xạ phổ rộng. Tuy nhiên, môi trường rắn thường chỉ hấp thụ ở một hoặc một vài bước sóng cụ thể. Do đó, phần lớn năng lượng từ đèn flash sẽ chuyển thành nhiệt, điều này đòi hỏi các hệ thống làm mát cho tinh thể cũng như hạn chế hiệu suất chuyển laser diode có bước sóng phát xạ phù hợp với phổ hấp thụ của môi trường hoạt chất đang dần được thay thế cho đèn flash.

Trong quá trình bơm cho môi trường khuếch đại, xung laser bơm cần được đồng bộ với xung laser tín hiệu để quá trình khuếch đại được ổn định và hiệu suất chuyển đổi từ năng lượng bơm sang năng lượng laser sau khuếch đại đạt được là lớn nhất. Hơn nữa, sự chồng chập giữa chùm laser tín hiệu và chùm laser bơm cũng như phân phối năng lượng bơm trong môi trường khuếch đại sẽ có ảnh hưởng trực tiếp đến chất lượng không gian của chùm laser sau khuếch đại cũng như hiệu suất của quá trình khuếch đại.



Hình 1.3. Cấu hình bơm a). Bơm ngang. b). Bơm dọc [13]

Hình 1.3 chỉ ra hai cấu hình bơm cơ bản cho khuếch đại laser trạng thái rắn. Với cấu hình bơm ngang (Hình 1.3.a), chùm laser bơm gần như vuông góc với hướng của chùm laser tín hiệu. Ưu điểm chính của bơm ngang là cho phép sử dụng các nguồn bơm có độ kết hợp không gian không cao như các đèn flash, có thể dễ dàng kết hợp nhiều nguồn bơm và công suất bơm có thể được phân bố đều dọc theo môi trường hoạt chất. Do vậy, bơm ngang thường được sử dụng cho khuếch đại các laser trạng thái rắn công suất cao. Tuy nhiên, cấu hình bơm ngang cũng có những hạn chế như hiệu suất chuyển đổi laser không cao, chất lượng chùm tia không tốt và cơ chế làm mát cho tinh thể phức tạp. Cấu hình bơm dọc được chỉ ra trên Hình 1.3.b, chùm bơm cùng với chùm laser tín hiệu sẽ đi dọc theo trục quang học của môi trường hoạt chất. Cấu hình này cho phép đạt được sự chồng chập tốt về không gian giữa chùm laser bơm và laser tín hiệu giúp tăng hiệu suất chuyển đổi laser cũng như chất lượng chùm laser lối ra tốt hơn. Phân lớn các laser trạng thái rắn được bơm bằng laser đi-ốt đều sử dụng cấu hình bơm dọc. Tuy nhiên, cấu hình bơm dọc có nhược điểm là chỉ cho phép tối đa bơm từ hai hướng dẫn tới hạn chế tổng công suất bơm, hơn nữa bơm dọc không áp dụng được cho đèn flash.

Khuếch đại phát xạ tự phát (ASE): là quá trình mà bức xạ phát xạ tự phát (thường là huỳnh quang) có thể được khuếch đại lên một mức đáng kể trong môi trường khuếch đại. ASE là hiện tượng không mong muốn trong khuếch đại laser, hiện tượng này làm giảm nghịch đảo độ tích lũy, tăng tín hiệu nhiễu hoặc thậm chí dập tắt laser. Môi trường có độ khuếch đại cao hoặc chiều dài khuếch đại lớn là những điều kiện thuận lợi cho hiện tượng phát xạ tự phát xảy ra, hiện tượng này còn có thể được tăng cường khi được phản xạ bởi gương và (hoặc) trên bề mặt tinh thể khuếch đại.

Phân bố năng lượng của chùm laser sau khuếch đại: sau quá trình khuếch đại, phân bố năng lượng của chùm laser lối ra có thể bị biến dạng so với laser tín hiệu, phân bố năng lượng cao cục bộ có thể phá hủy tinh thể hoặc các hiện tượng quang phi tuyến không mong muốn. Nguyên nhân phổ biến của hiện tượng này là nồng độ pha tạp trong tinh thể không đồng nhất, tinh thể lẫn tạp chất hoặc hiệu ứng nhiệt trong tinh thể không đồng nhất, tinh thể lẫn tạp chất hoặc hiệu ứng nhiệt trong tinh thể khuếch đại. Trong đó, đường màu đỏ biểu diễn phân bố năng lượng của chùm laser bơm, đường màu xanh lam biểu diễn biên dạng nhiệt bên trong tinh thể Nd:YAG. Do biên dạng nhiệt gần tâm tinh thể có dạng parabol dẫn tới chùm laser lối ra có những quang sai nhất định [40, 41].



Hình 1.4. Biên dạng cường độ của chùm laser tới (màu đỏ) và biên dạng nhiệt (màu xanh lam) trong tinh thể Nd:YAG [42].

Biến dạng xung laser tín hiệu: biến dạng xung laser tín hiệu trong quá trình khuếch đại là hệ quả của khuếch đại bão hòa, hiện tượng xảy ra khi khuếch đại các xung laser cực ngắn, công suất cao. Trong quá trình khuếch đại, phần trước của xung laser tín hiệu đi vào môi trường khuếch đại khi môi trường có nghịch đảo độ tích lũy lớn nhất, phần sau của xung đi vào khi nghịch đảo độ tích lũy đã suy giảm một phần. Do đó, năng lượng khuếch đại được thêm vào phần trước của xung là nhiều hơn so với phần sau.



Hình 1.5. Sự biến dạng của xung laser sau mỗi lần khuếch đại [43].

Hình 1.5 cho thấy dạng xung laser tín hiệu đầu vào và xung laser sau mỗi lần khuếch đại, quá trình khuếch đại có xu hướng ưu tiên sườn trước và đỉnh xung dịch

chuyển theo thời gian sớm hơn. Để hạn chế hiện tượng biến dạng xung, các bộ khuếch đại sẽ hoạt động trong điều kiện tín hiệu nhỏ, các bộ khuếch đại công suất cao sẽ được chia thành nhiều tầng được phân lập bởi các chất hấp thụ bão hòa nhằm điều chỉnh dạng xung tín hiệu trước khi đi vào tầng khuếch đại tiếp theo.

Hiệu ứng quang học phi tuyến: Hiệu ứng quang học phi tuyến xảy ra khi một chùm bức xạ công suất cao lan truyền trong môi trường phi tuyến, khi đó chiết suất của vật liệu sẽ tỉ lệ thuận với cường độ điện trường của chùm bức xạ tới theo công thức [43]:

$$n = n_0 + n_2 I. (1.1)$$

trong đó, *I* là cường độ của bức xạ tới (W), n_0 là chiết suất tuyến tính, n_2 là hệ số chiết suất phi tuyến (cm²/W hoặc esu). Trong khuếch đại laser, các hiệu ứng phi tuyến như tự hội tụ (Kerr lens) và (hoặc) tự điều biến pha (self phase modulation) nếu không được kiểm soát có thể gây phá hủy tinh thể hay biến dạng laser tín hiệu. Tuy nhiên, hệ số chiết suất phi tuyến là rất nhỏ so với chiết suất tuyến tính (nhỏ hơn ~10¹⁴ lần) dẫn đến các hiệu ứng phi tuyến chỉ sảy ra khi chùm laser kích thích có mật độ công suất rất lớn [43].

1.1.3. Cấu hình khuếch đại laser

Việc lựa chọn cấu hình cũng như các thành phần của bộ khuếch đại laser là quan trọng, phụ thuộc vào yêu cầu công suất laser sau khuếch đại, đặc trưng của xung laser tín hiệu và đặc trưng của môi trường khuếch đại. Với các xung laser ngắn cỡ ns hoặc ps, bộ khuếch đại nhiều lần truyền qua (*multipass amplifiers*), bộ khuếch đại nhiều tầng truyền qua (*multi-stage amplifier*) hoặc bộ khuếch đại tái phát (*regenerative amplifiers*) thường được sử dụng.

1.1.3.1. Hệ khuếch đại một tầng truyền qua

Trong các hệ khuếch đại, hệ khuếch đại một tầng truyền qua (một lần truyền qua) có cấu tạo đơn giản nhất, việc căn chỉnh hệ cũng không quá phức tạp, hệ có thể được sử dụng cho tất cả môi trường khuếch đại rắn, lỏng, khí. Xung laser tín hiệu từ các bộ dao động thông qua một vài gương dẫn chùm sẽ được đưa qua tinh thể khuếch đại. Hệ khuếch đại một tầng truyền qua còn có ưu điểm là các đặc tính về phổ và thời gian của xung laser tín hiệu gần như không thay đổi sau quá trình khuếch đại. Tuy nhiên, hệ có nhược điểm là hệ số khuếch đại thấp do không tối ưu được hiệu suất chuyển đổi laser. Hình 1.6 là sơ đồ hệ khuếch đại Nd:YVO₄ một tầng truyền qua được báo cáo bởi Mingming Nie, năm 2016. Hệ được xây dựng nhằm đánh giá các ảnh hưởng của laser bơm, laser tín hiệu, độ chồng lấp giữa xung bơm và xung tín hiệu cũng như ảnh hưởng của nồng độ pha tạp ion Nd³⁺ đến hệ số khuếch đại laser [44].



Hình 1.6. Sơ đồ hệ khuếch đại một tầng truyền qua Nd:YVO₄ [44].

1.1.3.2. Hệ khuếch đại nhiều tầng truyền qua

Hệ khuếch đại nhiều tầng truyền qua thường được xử dụng để phát triển các hệ laser rắn công suất cao. Về cấu tạo, hệ khuếch đại nhiều tầng có thể xem như gồm nhiều bộ khuếch đại một lần truyền qua ghép nối tiếp. Đối với các hệ khuếch đại nhiều tầng truyền qua, ưu điểm của hệ là:

- Mỗi tầng (giai đoạn) có thể điều chỉnh riêng biệt để đạt được độ khuếch đại tốt nhất, việc phân chia năng lượng bơm, tính toán tiết diện vùng bơm cho mỗi tầng được tối ưu, xung tín hiệu ở mỗi tầng dễ dàng được khảo sát.
- Hiệu tượng khuếch đại phát xạ tự phát có thể được hạn chế hoặc loại trừ bằng các tấm phin lọc đặt giữa các tầng.

Tuy nhiên, hệ khuếch đại nhiều tầng truyền qua có nhược điểm là kích thước hệ lớn cần dùng đến nhiều yếu tố quang học để thiết lập và hiệu suất khuếch đại không cao [13, 14]. Hình 1.7 là hệ khuếch đại các xung laser ở bước sóng 1064 nm sử dụng tinh thể Nd:YVO4 được báo cáo bởi Yutao Huang năm 2019 [45]. Hệ khuếch đại gồm bốn tầng truyền qua, trong đó tầng khuếch đại đầu tiên là tiền khuếch đại, ba tầng khuếch đại tiếp theo là khuếch đại công suất.





1.1.3.3. Hệ khuếch đại tái phát

Hệ khuếch đại tái phát được cấu tạo gồm môi trường khuếch đại có thời gian lưu trữ năng lượng dài (thời gian sống huỳnh quang ~ 10⁻⁶s) được đặt trong BCH quang học. Xung laser tín hiệu sẽ được điều khiển đi qua môi trường khuếch đại nhiều lần. Sau một số chu trình nhất định được xác định bởi thời gian lưu trữ năng lượng hay thời gian xung tín hiệu đạt trạng thái bão hòa, xung tín hiệu được điều khiển ra khỏi BCH bằng công tắc quang là tế bào quang điện và bộ phân cực. Hệ khuếch đại tái phát có ưu điểm là cho hệ số khuếch đại lớn, hiện tượng khuếch đại phát xạ tự phát được giảm thiểu và hiệu suất chuyển đổi năng lượng cao do sự chồng chập tốt về không gian giữa chùm laser bơm và chùm laser tín hiệu

Hình 1.8 là sơ đồ hệ khuếch đại tái phát được nhóm nghiên cứu tại đại học Paris-Sud, Pháp sử dụng khuếch đại các xung laser femto giây Yb:SrF₂. Tinh thể khuếch đại được đặt trong một BCH quang học tạo bởi hai gương phẳng M_1 và M_2

phản xạ toàn phần tại bước sóng laser. Laser tín hiệu đi vào BCH nhờ tấm phân cực, tế bào quang điện Pockels đóng vai trò như một khóa điều chỉnh hướng phân cực của xung và độ phẩm chất của BCH (Q-switch buồng cộng hưởng) [46].



Hình 1.8. Sơ đồ hệ khuếch đại tái phát Yb: SrF_2 [46].

1.1.3.4. Hệ khuếch đại nhiều lần truyền qua

Khuếch đại nhiều lần truyền qua thường được sử dụng để phát triển các hệ laser rắn công suất cao do môi trường laser rắn thường có thời gian sống huỳnh quang dài và thông lượng bão hòa lớn. Sơ đồ cơ bản của một bộ khuếch đại bốn lần truyền qua được chỉ ra trên Hình 1.9. Ưu điểm của bộ khuếch đại nhiều lần truyền qua là xung laser tín hiệu được đưa qua môi trường khuếch đại nhiều lần, do đó tối ưu được quá trình chuyển đổi năng lượng bơm thành năng lượng laser sau khuếch đại. Xung laser tín hiệu trong mỗi lần khuếch đại có thể được hiệu chỉnh độc lập. Hơn nữa, bộ khuếch đại nhiều lần truyền qua còn có các ưu điểm như hệ số khuếch đại lớn, chùm laser sau khuếch đại có độ ổn định cao. Việc thiết kế hệ khuếch đại nhiều lần truyền qua cũng cần chú ý:

- Thời gian trễ giữa các lần truyền qua tương ứng với thời gian hồi phục của môi trường và số lần truyền qua được xác định bằng tỷ số giữa thời gian bơm với thời gian hồi phục của môi trường [13, 14].
- Để tăng chiều dài khuếch đại hiệu dụng thì góc giữa chùm laser tín hiệu và chùm laser bom trong tinh thể được hiệu chỉnh nhỏ nhất trong mỗi lần khuếch đại [13, 14].



Hình 1.9. Sơ đồ hệ khuếch đại nhiều lần truyền qua [47].

Một số cấu hình khác của hệ khuếch đại nhiều lần truyền qua cũng đã được phát triển (Hình 1.10). Trong các cấu hình này, môi trường khuếch đại được đặt giữa hai gương cầu đồng tiêu đóng vai trò như một BCH do đó giảm thiểu được số thiết bị linh kiện quang học sử dụng cũng như dễ dàng hiệu chỉnh hệ [48, 49].



Hình 1.10. Sơ đồ hệ khuếch đại nhiều lần truyền qua sử dụng các gương cầu đồng tiêu [48, 49].

1.1.4. Phương trình Franz-Nodvik cổ điển

Trong khuếch đại laser, áp dụng phương trình Franz-Nodvik được đề xuất năm 1963 là một phương pháp hiệu quả để xác định năng lượng laser sau khuếch đại theo năng lượng laser tín hiệu và độ khuếch đại ban đầu [50].

Giả sử xung laser tín hiệu ngắn hơn nhiều so với xung bơm và thời gian sống huỳnh quang, khi đó ảnh hưởng của quá trình phát xạ tự phát và quá trình bơm có thể bỏ qua. Nghịch đảo độ tích lũy được xem là đồng nhất trong môi trường khuếch đại và được xác định bằng công thức [14]:

$$\frac{\partial n}{\partial t} = -\delta n c \sigma \phi \,. \tag{1.2}$$

trong đó: *n* là nghịch đảo tích lũy, δ là hệ số suy giảm độ tích lũy (*inversion reduction factor*), ϕ mật độ photon (photon/cm³), σ là tiết diện phát xạ (cm²), *c* là vận tốc ánh sáng (cm/s).

Giả sử môi trường khuếch đại có chiều dài hiệu dụng là l, vị trí chùm tín hiệu bắt đầu đi vào môi trường khuếch đại là x = 0, khi đó mật độ photon theo thời gian khi xung laser tín hiệu lan truyền qua môi trường khuếch đại là [14]:

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} = cn\sigma\phi - \frac{\partial \phi}{\partial x}c. \qquad (1.3)$$

Bằng việc giải phương trình (1.2) và (1.3), Frantz và Nodvik đã biểu diễn quá trình khuếch đại xung laser tín hiệu thông qua phương trình:

$$\frac{\phi(x,t)}{\phi_0} = \left\{ 1 - \left[1 - \exp(-\sigma nx) \right] \exp\left[-\delta\sigma\phi_0 c \left(t - \frac{x}{c} \right) \right] \right\}^{-1}.$$
(1.4)

trong đó, t_p thời gian xung laser tín hiệu (s), ϕ_0 là mật độ photon ban đầu, tại thời điểm ban đầu t = 0 xem như mật độ phân bố photon là đồng đều trong môi trường. Khi đó, hệ số khuếch đại năng lượng được xác định tại vị trí x=l là [14]:

$$G = \frac{1}{\phi_0 t_p} \int_{-\infty}^{+\infty} \phi(l, t) dt . \qquad (1.5)$$

Thế phương trình (1.4) vào phương trình (1.5) và lấy tích phân ta được:

$$G = \frac{1}{c\delta\sigma\phi_0 t_p} \ln\{1 + \left[\exp(\delta\sigma\phi_0 t_p c) - 1\right]e^{n\sigma l}\}.$$
(1.6)

Để đơn giản, các phương trình trên được biểu diễn bằng mật độ năng lượng (năng lượng trên một đơn vị diện tích). Khi đó, thông lượng laser tín hiệu là:

$$E_{in} = c\phi_0 t_p h\nu. \tag{1.7}$$

Thông lượng bão hòa E_s được xác định bằng biểu thức:

$$E_s = \frac{h\nu}{\delta\sigma} = \frac{J_{st}}{\delta g_0} \,. \tag{1.8}$$

trong đó, $J_{st} = hvn$ là năng lượng tích trữ trên mỗi đơn vị diện tích ở trạng thái kích thích; $g_0 = n\sigma$ là hệ số khuếch đại tín hiệu nhỏ. Đối với môi trường khuếch đại hoạt động theo bốn mức năng lượng, hệ số $\delta = 1$ và năng lượng tích trữ khi đó là:

$$J_{st} = g_0 E_s. \tag{1.9}$$

Gọi E_{out} là năng lượng laser sau khuếch đại, khi đó hiệu suất trích xuất năng lượng (η_E) là tỉ lệ giữa năng lượng trích xuất và năng lượng dự trữ ở mức kích thích tại thời điểm xung tín hiệu đi qua và được xác định bằng:

$$\eta_E = \frac{E_{out} - E_{in}}{g_0 l E_s}.$$
(1.10)

Thay Phương trình (1.7), (1.8) vào Phương trình (1.6) ta được [14]:

$$G = \frac{E_s}{E_{in}} \ln\left\{1 + \left[\exp\left(\frac{E_{in}}{E_s}\right) - 1\right] G_0\right\}.$$
(1.11)

trong đó, $G_0 = \exp(g_0 l)$ là độ khuếch đại ban đầu

Phương trình (1.11) cho biết mối quan hệ giữa độ khuếch đại G, năng lượng xung đầu vào E_{in} , năng lượng bão hòa E_s . Phương trình (1.11) được áp dụng cho cả hai chế độ khuếch đại tín hiệu nhỏ và chế độ khuếch đại bão hòa.

Trường hợp năng lượng tín hiệu đầu vào là nhỏ sao cho $E_{in}/E_s \ll 1$ hoặc $G_0 E_{in}/E_s \ll 1$, phương trình (1.11) có thể được rút gọn thành:

$$G = G_0 \equiv \exp(g_0 l). \tag{1.12}$$

Trong trường hợp không có hiệu ứng bão hòa, hệ số khuếch đại tín hiệu nhỏ là hàm mũ phụ thuộc chiều dài môi trường khuếch đại. Tuy nhiên, điều này chỉ cho phép chiều dài tinh thể tăng lên đến một giá trị mà tại đó năng lượng laser G_0E_{in} nhỏ hơn so với năng lượng bão hòa E_s :

Trong trường hợp khuếch đại bão hòa, $E_{in}/E_s >> 1$, hệ số khuếch đại được xác định theo công thức :

$$G \simeq 1 + \left(\frac{E_s}{E_{in}}\right) g_0 l. \tag{1.13}$$

Phương trình (1.13) cho thấy hệ số khuếch đại tăng tuyến tính với chiều dài của môi trường khuếch đại, khi đó tất cả các điện tử ở trạng thái kích thích đều phát xạ và đóng góp vào quá trình khuếch đại. Trong trường hợp này, năng lượng tích trữ được chuyển đổi thành năng lượng chùm laser khuếch đại hiệu quả nhất do đó các bộ khuếch đại công suất thường được thiết kế hoạt động trong điều kiện bão hòa.

Phương trình (1.11) có thể được viết lại nhằm thuận tiện cho việc tính toán năng lượng laser sau khuếch đại theo công thức [14]:

$$E_{out} = E_s \ln\left\{1 + \left[\exp\left(\frac{E_{in}}{E_s}\right) - 1\right] \exp(g_0 l)\right\}.$$
(1.14)

Với hệ khuếch đại gồm nhiều tầng hoặc nhiều lần truyền qua, phương trình khuếch đại được áp dụng liên tiếp, xung laser sau khuếch đại sẽ là xung tín hiệu cho lần khuếch đại tiếp theo. Khi đó, năng lượng đầu ra E'_{out} từ bộ khuếch đại được xác định theo công thức:

$$E'_{out} = E_s \ln\left\{1 + \left[\exp\left(\frac{E_{out}}{E_s}\right) - 1\right] \exp(g'_0 l)\right\}.$$
(1.16)

Sau mỗi lần khuếch đại, năng lượng chùm laser sẽ tăng lên đồng thời hệ số khuếch đại sẽ giảm do một phần năng lượng tích trữ được sử dụng cho lần khếch đại trước đó, hệ số khuếch đại lần tiếp theo được xác định bằng:

$$g'_0 = (1 - \eta_E)g_0. \tag{1.17}$$

Hiệu suất trích suất năng lượng của bộ khuếch đại nhiều lần truyền qua khi đó sẽ được xác định theo công thức:

$$\eta'_E = (E'_{out} - E_{in})/g_0 l E_s. \tag{1.18}$$

Sử dụng phương trình Franz-Nodvik cổ điển là cách hiệu quả để xác định năng lượng lối ra theo năng lượng đầu vào của các bộ khuếch đại laser. Tuy nhiên, phương trình này cũng có những hạn chế như chỉ biểu diễn các đại lượng ở trạng thái dừng mà bỏ qua sự phụ thuộc của các yếu tố nghịch đảo độ tích lũy, tốc độ bơm cũng như sự biến thiên của xung bơm vào thời gian. Hơn nữa, phương trình chỉ áp dụng cho khuếch đại xung tín hiệu đơn sắc và không biểu diễn được các hiệu ứng phổ trong quá trình khuếch đại xung laser băng rộng. Do vậy, một số phương trình Franz-Nodvik mở rộng cũng đã được phát triển để khắc phục các nhược điểm trên [51-54].

1.2. Tổng quan về môi trường laser Ce:LiCAF

1.2.1. Môi trường fluoride pha tạp ion Cerium

Môi trường Fluoride pha tạp ion Cerium đã được chứng minh là hiệu quả trong việc phát trực tiếp các bức xạ laser trong vùng UV. Việc phát bức xạ laser UV của các môi trường này dựa trên dịch chuyển 5d – 4f của ion Cerium hóa trị ba trong nền Fluoride. Sơ đồ các mức năng lượng và các chuyển dời quang học của của ion Ce³⁺ được chỉ ra trên Hình 1.11. Tại mức năng dưới 4f do tương tác spin – quỹ, năng lượng bị phân tách thành hai mức ${}^{2}F_{7/2}$ và ${}^{2}F_{5/2}$ với khoảng cách giữa hai mức là 2253 cm⁻¹.

Mức năng lượng kích thích 5d cũng bị phân chia do tương tác spin – quỹ đạo thành các mức ${}^{2}D_{3/2}$ và ${}^{2}D_{5/2}$ lần lượt nằm tại 49737 cm⁻¹ và 52226 cm⁻¹. Hơn nữa, tương tác mạnh giữa lớp điện tử 5d và cấu trúc mạng tinh thể dẫn đến phổ huỳnh quang của các môi trường Ce:Fluoride mở rộng tới hàng chục nm. Bên cạnh đó, khoảng cách năng lượng giữa các mức laser trên và mức laser dưới của ion Ce³⁺ trong nền fluoride khá lớn (từ 20000 cm⁻¹ đến 30000 cm⁻¹) dẫn tới xác suất dịch chuyển không bức xạ đa phonon là thấp và hiệu suất lượng tử cao (>90%). Tuy nhiên, môi trường Ce:Fluoride cũng có nhược điểm là hấp thụ mạnh ở trạng thái kích thích (ESA) đối với bức xạ tại bước sóng huỳnh quang hoặc bước sóng bơm. Đây là nguyên nhân dẫn tới hình thành các tâm màu tạm thời hoặc vĩnh viễn, gây mất mát quang học thậm chí dập tắt hoạt động laser. Do đó, việc lựa chọn các nền rắn phù hợp để giảm thiểu tối đa hiện tượng ESA và tăng khả năng khuếch đại của môi trường là cần thiết [20-24].



Hình 1.11. Sơ đồ cấu trúc mức năng lượng và chuyển dời quang học của ion Ce^{3+} trong nền Fluoride [24].

Đến nay, người ta đã phát triển thành công sáu môi trường tinh thể Ce:Fluoride phát trực tiếp bức xạ tử ngoại trên một dải phổ rộng gồm: Ce³⁺:LiSrAlF₆ (280-320

nm); Ce³⁺:LiCaAlF₆ (280-320 nm); Ce³⁺:LuLiF₄ (300-340 nm) và Ce³⁺:YLiF₄ (300-340 nm); Ce³⁺:LaF₃ và Ce³⁺:LuF₃ (275-315 nm) [24, 25, 35].

1.2.2. Các đặc trưng của môi trường Ce:LiCAF

Cho đến nay, tinh thể Ce:LiCAF có thể được nuôi bằng các kỹ thuật là Micro pulling down, Czochralski và Bridgman, cấu trúc của tinh thể Ce:LiCAF là dạng Colquiriite và thuộc nhóm không gian P31c với hằng số mạng a = 4,996 Å, c = 9,636Å và điện trường bên trong tinh thể song song với trục quang học c. Khi chưa pha tạp, LiCAF là tinh thể đơn trục với sáu nguyên tử flo (F⁻) bao quanh một nguyên tử lithium (Li⁺), canxi (Ca²⁺) hoặc nhôm (Al³⁺), mỗi ion Li⁺, Ca²⁺ và Al³⁺ chiếm một vị trí bát diện. Cấu trúc này cũng được mô tả bằng cách xếp chồng các lớp nguyên tử kim loại và flo song song với trục c, Hình 1.12 [20,35].



Hình 1.12. Cấu trúc mạng tinh thể của chất nền LiCAF [20].

Đối với môi trường Ce:LiCAF cũng như các môi trường Ce:Flouride khác, hiện tượng hấp thụ ở trạng thái kích thích (ESA) được đặc biệt quan tâm do ảnh hưởng của chúng đến hiệu suất laser. Các nghiên cứu thực nghiệm cho thấy, hiện tượng ESA của môi trường Ce:LiCAF là nhỏ so với các môi trường Flouride khác, dẫn đến hiệu suất lượng tử của laser Ce:LiCAF cao hơn, lên tới trên 90%. Bên cạnh đó, môi trường laser Ce:LiCAF này còn có những ưu điểm nổi bật so với các môi trường Ce:Fluoride khác như: Đỉnh phổ hấp thụ tại bước sóng 266 nm (Hình 1.13), phù hợp với việc bơm quang học bằng họa ba bậc bốn của các laser thương mại Nd:YAG [24, 55].



Hình 1.13. Phổ hấp thụ và phát xạ của môi trường Ce:LiCAF [55].

- Tiết diện phát xạ lớn (~7,5×10⁻¹⁸ cm²) nên hiệu suất laser cao cũng như ngưỡng phát laser thấp [22-24].
- Phổ phát xạ rộng 40 nm từ 280 nm đến 320 nm (Hình 1.8). Do đó, môi trường này được ứng dụng nhiều trong việc phát triển các nguồn laser UV toàn rắn điều chỉnh bước sóng. Với phổ phát xạ rộng, môi trường cũng cho phép phát triển các nguồn laser UV phát xung cực ngắn, theo lý thuyết môi trường có thể phát các xung laser ngắn xuống tới 3 fs [24, 55].
- Thời gian sống huỳnh quang của ion Ce³⁺ ở trạng thái kích thích cỡ 30 ns,
 phù hợp để phát triển các hệ khuếch đại laser nhiều lần truyền qua [22-24].
- Mật độ năng lượng bão hòa lớn cỡ 115 mJ/cm² và ngưỡng phá hủy cao 5 J/cm², do đó tinh thể Ce:LiCAF phù hợp để phát triển các nguồn laser UV công suất cao [24]. Hơn nữa, việc nghiên cứu chiết suất phi tuyến của vật liệu nền Fluoride cho thấy môi trường LiCAF có chiết suất phi tuyến nhỏ nhất (Hình 1.14). Do đó với cùng một chùm laser công suất cao lan truyền trong các vật liệu nền Flouride thì vật liệu Ce:LiCAF sẽ có hiệu ứng phi tuyến nhỏ nhất và sẽ là môi trường phù hợp hơn cho các ứng dụng laser công suất cao, xung cực ngắn [40].


Hình 1.14. Chiết suất phi tuyến của các vật liệu Fluoride trong vùng bước sóng tử ngoại [40].

1.2.3. Hệ laser tử ngoại dựa trên tinh thể Ce:LiCAF

Với những ưu điểm vượt trội như trên, môi trường Ce:LiCAF đã được lựa chọn cho việc phát triển các nguồn laser UV băng hẹp, laser UV xung ngắn, và laser UV công suất cao.



Hình 1.15. a) Hệ laser Ce:LiCAF điều chỉnh bước sóng sử dụng tấm etalon. b) Vùng điều chỉnh bước sóng với [31].

Năm 2015, một hệ laser UV Ce:LiCAF phát bức xạ băng hẹp và điều chỉnh bước sóng đã được Barbara Wellmann phát triển tại Đại học Macquarie, Úc (Hình 1.15.a). Với việc sử dụng tấm etalon đặt trong BCH, các bức xạ UV thu được có năng lượng cõ mW, độ rộng phổ xuống tới 14 pm và điều chỉnh được liên tục bước sóng từ 284,5 nm đến 298 nm (Hình 1.15.b) [31].Hệ laser UV Ce:LiCAF điều chỉnh bước sóng sử dụng yếu tố tán sắc là lăng kính đặt trong BCH cũng đã được Viktor A. Fromzel (Trung tâm nghiên cứu NASA Langley, Mỹ) phát triển, chùm laser lối ra có độ rộng phổ cỡ 0,2 nm với vùng điều chỉnh rộng 34 nm từ 281 đến 315 nm [32].

Việc phát triển nguồn laser UV xung ngắn sử dụng tinh thể Ce:LiCAF cũng đã được chứng minh. Năm 2021, bằng kĩ thuật khóa mode BCH, hệ laser UV Ce:LiCAF phát trực tiếp xung UV 100 fs đã được phát triển bởi Adam Sharp (Đại học Macquarie, Úc) [26]. Hơn nữa, môi trường tinh thể Ce:LiCAF cũng đã được chứng minh là hiệu quả trong việc khuếch đại trực tiếp các xung laser UV fs với các cấu hình khuếch đại nhiều lần truyền qua [37] và cấu hình bơm đồng nhất [16].



Hình 1.16. Sơ đồ hệ khuếch đại laser Ce:LiCAF năng lượng cao hai lần truyền qua [36].

Nhìn chung, các nguồn laser UV Ce:LiCAF phát bức xạ băng hẹp hay xung ngắn thường có năng lượng thấp dưới ngưỡng của nhiều ứng dụng. Do đó, việc khuếch đại về mặt năng lượng các nguồn laser này là cần thiết. Một hệ khuếch đại năng lượng cao Ce:LiCAF hai lần truyền qua đã được Shingo Ono (Đại học Tohoku, Nhật Bản) phát triển, sơ đồ cấu tạo của hệ được chỉ ra trên Hình 1.16 [36]. Trong cấu hình này, tinh thể khuếch đại Ce:LiCAF có kích thước 10x20x20 mm, được bơm hai đầu bằng bốn chùm laser với tổng năng lượng 380 mJ tại bước sóng 266 nm. Xung laser tín hiệu có năng lượng 15 mJ tại bước sóng 290 nm sau hai lần khuếch đại có

năng lượng là 98 mJ, tương ứng với hệ số khuếch đại là 6,5 và hiệu suất khuếch đại là 25% [36].

1.3. Úng dụng của laser tử ngoại

Trải qua sáu thập kỷ phát triển, laser nói chung và laser UV nói riêng gắn liền với nhiều thành tự khoa học mang tính đột phá ở các lĩnh vực khác nhau. Trong gia công vật liệu vi cơ khí, laser là thiết bị duy nhất giúp chế tạo ra các chip điện tử với tiến trình xuống tới 7 nm. Trong y học, dao mổ laser có khả năng hoạt động ổn định, độ chính xác cao, vết mổ vô trùng và không chảy máu. Trong nghiên cứu môi trường, laser chính là nhân tố quan trọng thúc đẩy sự phát triển của khoa học nghiên cứu khí quyển do có khả năng thực hiện các phép đo xa dựa trên các hiện tượng tán xạ, hấp thụ, Doppler và giao thoa [56-60]. Một số ứng dụng cụ thể của laser UV trong gia công vật liệu và nghiên cứu môi trường được trình bày trình trong phần tiếp theo.

1.3.1. Ứng dụng trong gia công vật liệu, vi cơ khí

Với sự phát triển nhanh chóng của ngành công nghiệp điện tử, xu hướng các sản phẩm công nghệ đa chức năng trong một kích thước nhỏ gọn ngày càng phát triển, điều này đặt ra những yêu cầu ngày càng cao trong lĩnh vực cơ khí chế tạo. Trong những năm gần đây, những tiến bộ và ứng dụng của laser UV trong công nghiệp cơ khí chế tạo đã và đang thu hút được nhiều sự quan tâm. Các nguồn laser UV cho phép xử lý các cấu trúc phức tạp trên hầu hết mọi vật liệu với độ chính xác cao, tốc độ lặp lại lớn và hiệu ứng nhiệt nhỏ. Hình 1.17 là kết quả gia công vật liệu của laser Nd:YAG ở bước sóng 355 nm trên các vật liệu nhựa (Hình 1.17.a-d) và trên kim cương (Hình 1.17.e) [59].



Hình 1.17. Laser UV khắc trên các vật liệu (a). Nhựa PI (b). Nhựa epoxy (c). Nhựa PI kết hợp nhựa epoxy (d). Nhựa acrylic kết hợp nhựa PI. (e). Kim cương [59].

Khi so sánh với các thiết bị gia công vật liệu sử dụng laser trong vùng bước sóng khả kiến và vùng hồng ngoại, thiết bị gia công dựa trên laser UV có ưu điểm là gia công chính xác hơn do kích thước chùm laser UV có thể hội tụ nhỏ hơn. Hơn nữa, laser UV với năng lượng photon cao có thể trực tiếp phá vỡ các liên kết hóa học của vật liệu (quá trình quang hóa) làm cho vật liệu trong vùng chiếu xạ bốc hơi mà không gây ra các hiệu ứng nhiệt đáng kể lên các vùng lân cận (Hình 1.18).



Hình 1.18. So sánh vết cắt của laser hồng ngoại và tử ngoại [59].

Các nguồn laser UV được ứng dụng trong gia công vật liệu vi cơ khí chủ yếu là các laser excimer điển hình là Ar₂ (126 nm) ArF (193 nm), KrF (248 nm), XeCl (308 nm),... Ưu điểm của các nguồn laser này là độ ổn định cao, công suất lớn, bước sóng có thể xuống tới vùng tử ngoại sâu đây cũng là các nguồn laser UV đầu tiên được ứng dụng trong gia công vật liệu. Hiện nay, một số nguồn laser biến đổi tần số từ các laser phát trong vùng bước sóng dài hơn như laser toàn rắn Nd:YAG, Ti:sapphire hoặc các nguồn laser bán dẫn phát trực tiếp bức xạ UV như ZnO, GaN với ưu điểm nhỏ gọn, độ ổn định cao cũng được ứng dụng phổ biến trong gia công vật liệu [56].

1.3.2. Ứng dụng trong nghiên cứu môi trường

Ô nhiễm khí quyển không chỉ gây ra các tác động tiêu cực đến sức khỏe con người, đời sống động thực vật, mà còn là nguyên nhân chính gây biến đổi khí hậu theo chiều hướng tiêu cực trên toàn cầu hiện nay. Do đó, việc nghiên cứu đánh giá khí quyển nhằm đưa ra các biện pháp phù hợp cải thiện chất lượng khí quyển là mục tiêu đang được quan tâm hiện nay. Bảng 1.2 chỉ ra các đặc điểm về vùng phổ hấp thụ, các dịch chuyển quang học của một số khí trong khí quyển. Kết quả cho thấy, nhiều chất khí ô nhiễm có vùng phổ hấp thụ nằm trong vùng bước sóng UV như NO, NO₂, NH₃, O₃... Do đó, các hệ Lidar dựa trên laser UV đã được phát triển cho các nghiên cứu khí quyển [10, 61, 62].

Phân tử	Bước sóng	Tiết diện hấp thụ	Dịch chuyển
	(nm)	x 10 ⁻¹⁹ cm ²	
SO ₂	200-230	65	$c^1B_2 \leftarrow X^1A_1$
	290-310	5.7	$A^1B_1 \leftarrow X^1A_1$
	340-390		$a^{3}B_{2} \leftarrow X^{1}A_{1}$
CS_2	320-340	0.4	
NO	200-230	24	$A^2\Sigma^+ \leftarrow X^2\Pi$,
NO_2	330-500	2.5	$A^2B_1 \leftarrow X^2A_1$
NO_3	600-670	200	
NH_3	200 - 230	180	$A^1A_2 \leftarrow X^1A_1$
HNO_2	330-380	5.1	
O ₃	300-330	0.1	$\mathbf{C} \gets \mathbf{X^1}\mathbf{A_1}$
CH_2O	300-360	0.48	$A^1A_2 \leftarrow X^1A_1$
CHOCHO	400-480		$A^1A_u - X^1A_g$
ClO	260 - 300	35	$X^2\Pi \leftarrow A$
BrO	300-360	104	$\mathbf{X}^{2}\Pi \leftarrow \mathbf{A}$
IO	400 - 470	170	$\mathbf{X^2}\Pi \gets \mathbf{A}$
Benzene	240 - 270	21.9	$A^1B_{2\mathbf{u}} \gets X^1A_{1\mathbf{g}}$
Toluene	250 - 280	12.8	0
Xylene	250 - 280	2.1/6.6/20.3	
(o/m/p)			
Phenol	260 - 290	198	
Cresol	250 - 280	20.1/31.8/87.2	
(o/m/p)			
Benzaldehyde	280-290	44	

		· · · ·			/	,
D ? 1	T 7 \	1 ^ 1 ^	1 9	A. A 1	A. 11/.	
Rong 17	Vinna ano	na nha han	thu 0110	mot co ob	ot Izhi tronc	r Izbi auwon I I I I
	VIIIIO (IIIA	но вно наг	нин сня	THOI SO CH	ійт кнігтіоніс	, KIII (IIIVEII I IVI
	i ung guu	m_{Δ} pmo m_{α} p	una cau	mot bo vn		
			•	•	<u> </u>	

Hệ Lidar hấp thụ vi sai sử dụng laser Ce:LiCAF nghiên cứu khí quyển.

Năm 2017, một hệ Lidar dựa trên laser UV Ce:LiCAF khảo sát khí ozone tầng thấp đã được phát triển tại trung tâm nghiên cứu NASA Langley, Mỹ. Sơ đồ hệ laser được chỉ ra trên Hình 1.19. Hệ sử dụng nguồn kích thích là laser UV Ce:LiCAF có năng lượng 0,2 mJ tần số lặp lại 500 Hz, độ rộng phổ là 0,2 nm và vùng điều chỉnh bước sóng rộng 34 nm từ 281 nm đến 315 nm, được chỉ ra trên Hình 1.20.a.



Hình 1.19. Hệ laser tử ngoại Ce:LiCAF ứng dụng cho Lidar nghiên cứu khí quyển [32]

Hệ Lidar cũng đã được sử dụng để khảo sát nồng độ khí ozone tại một số thành phố ở Mỹ. Hình 1.20.b là kết quả đo được thực hiện vào ngày 31 tháng 1 năm 2014 tại Langley- Mỹ. Kết quả cho thấy, hệ Lidar có khả năng khảo sát ozone từ mặt đất lên đến độ cao 5 km với độ phân giải thời gian là 5 phút và độ phân giải không gian là 450 m [32].



Hình 1.20. a) Vùng điều chỉnh bước sóng của laser Ce:LiCAF và b). Kết quả đo của hệ Lidar ngày 31 tháng 1 năm 2014 tại Langley, Mỹ [32].

Nghiên cứu động học của các hạt sol khí

Việc tìm hiểu về sự phát triển, đặc biệt trong giai đoạn ban đầu của các hạt sol khí là cần thiết, nhằm nâng cao khả năng dự đoán ảnh hưởng của sol khí đến con người, động thực vật cũng như đưa ra được các giải pháp phù hợp nhằm giảm lượng phát thải [61-63]. Tuy nhiên, việc nghiên cứu động học của các hạt sol khí có kích thước nhỏ luôn là một thách thức với các nhà nghiên cứu. Năm 2020, một nhóm nghiên cứu tại đại học Vienna, Úc đã phát triển một thiết bị nghiên cứu động học của các hạt sol khí dựa trên cường độ tán xạ góc. Sơ đồ cấu tạo của thiết bị được chỉ ra trên Hình 1.21 [63].



Hình 1.21.a). Sơ đồ minh họa 2D và b). 3D của thiết bị đo cường độ tán xạ Mie theo góc [63].

Cấu tạo chính của thiết bị đo cường độ tán xạ Mie theo góc gồm hai nguồn laser kích thích độc lập phát bức xạ ở bước sóng 337 nm và 632 nm. Thiết bị cũng bao gồm các cảm biến đo tín hiệu tán xạ được đặt lệch góc 30° so với chùm laser. Các bộ lọc được đặt trước các cảm biến nhằm đảm bảo cảm biến hoạt động trong vùng bước sóng 337 nm không nhận được tín hiệu từ laser phát bức xạ 632 nm và ngược lại. Thiết bị sử dụng sự giãn nở đoạn nhiệt để gây ra hiện tượng siêu bão hòa và thúc đẩy sự phát triển của hạt nước. Tín hiệu tán xạ từ các hạt nước sau khi bị kích thích bởi hai nguồn laser sẽ được thu nhận đồng thời và so sánh với các kết quả mô phỏng theo lý thuyết Mie.

Kết quả khảo sát được chỉ ra trên Hình 1.22 cho thấy sự tương đồng về quá trình phát triển của các hạt sol khí theo thời gian khi được nghiên cứu bằng bức xạ laser UV 337 nm hoặc bằng bức xạ laser 632 nm. Tuy nhiên, việc sử dụng bức xạ laser UV kích thích giúp quan sát được sự phát triển của các hạt sol khí rõ hơn với độ phân giải gấp hai lần so với việc sử dụng bức xạ laser 632 nm [63].



Hình 1.22. Cường độ tán xạ theo thời gian của các hạt sol khí [63].

KÉT LUẬN CHƯƠNG 1

Trong chương 1, tổng quan về vấn đề khuếch đại laser như nguyên lý khuếch đại, các vấn đề vật lý và các cấu hình khuếch đại laser đã được trình bày. Qua đó thấy rằng, cấu hình khuếch đại nhiều lần truyền qua là phù hợp để phát triển các hệ khuếch đại công suất cao sử dụng môi trường laser toàn rắn. Cấu hình này cho hệ số khuếch đại cao, chất lượng chùm tốt với cơ cấu hiệu chỉnh đơn giản. Do đó, cấu hình khuếch đại nhiều lần truyền dụng cho phát triển các hệ laser UV công suất cao trong các nghiên cứu ở các chương tiếp theo.

Phương trình khuếch đại Franz-Nodvik cổ điển cũng đã được trình bày, việc áp dụng phương trình này là một phương pháp hiệu quả để nghiên cứu quá trình khuếch đại của các xung laser đơn sắc. Tuy nhiên, phương trình cổ điển này không cho phép khảo sát quá trình khuếch đại của các xung laser tín hiệu băng rộng. Do vậy một phương trình Franz-Nodvik mở rộng đã được xây dựng dựa trên phương trình cổ điển, phương trình mở rộng này cho phép khảo sát sự khuếch đại trên toàn miền phổ laser tín hiệu và sẽ được trình bày trong chương 2.

Chương 1 cũng đã trình bày tổng quan về môi trường Ce:LiCAF qua đó thấy rằng, môi trường này có nhiều ưu điểm để phát triển các nguồn laser UV cũng như phù hợp cho việc phát triển các hệ khuếch đại laser UV nhiều lần truyền qua. Tuy nhiên, các nghiên cứu khuếch đại laser UV sử dụng tinh thể Ce:LiCAF mới chỉ tập trung vào thực nghiệm và quan tâm đến năng lượng laser lối ra sau khuếch đại. Đến nay, việc nghiên cứu tường minh các quá trình động học đặc biệt là động học phổ trong khuếch đại các xung laser băng rộng sử dụng tinh thể Ce:LiCAF vẫn chưa được thực hiện. Do vậy, việc nghiên cứu đồng thời động học khuếch đại và phát triển thực nghiệm hệ khuếch đại các xung laser UV sử dụng tinh thể Ce:LiCAF sẽ được nghiên cứu lần lượt trong chương 2 và chương 3.

CHƯƠNG 2

ĐỘNG HỌC PHỔ KHUẾCH ĐẠI CÁC XUNG LASER TỬ NGOẠI SỬ DỤNG TINH THỄ Ce:LiCAF

Chương 2 trình bày các kết quả nghiên cứu động học phổ cho bộ khuếch đại các xung laser UV sử dụng tinh thể Ce:LiCAF. Bằng việc giải phương trình Franz-Nodvik mở rộng, sự ảnh hưởng của công suất laser bơm và các thông số của laser tín hiệu như: công suất, phổ... lên đặc trưng của laser sau tám lần khuếch đại sẽ được nghiên cứu tường minh [64, 65].

2.1. Cấu hình hệ khuếch đại nhiều lần truyền qua sử dụng tinh thể Ce:LiCAF

Trong thực nghiệm việc thiết kế số lần truyền qua của hệ khuếch đại sẽ phụ thuộc vào nhiều yếu tố như linh kiện quang học của phòng thí nghiệm, môi trường khuếch đại cũng như các đặc trưng quang học của xung laser bom và laser tín hiệu.



Hình 2.1. Cấu hình hệ khuếch đại các xung laser UV nhiều lần truyền qua sử dụng tinh thể Ce:LiCAF.

Trong nghiên cứu động học này, để xem xét tường minh được các hiệu ứng phổ cũng như quá trình khuếch đại công suất của xung laser tín hiệu, một hệ khuếch đại laser UV Ce:LiCAF tám lần truyền qua đã được thiết kế, cấu hình của hệ được chỉ ra trên Hình 2.1. Cấu tạo chính của hệ khuếch đại bao gồm tinh thể Ce:LiCAF và nguồn bơm. Tinh thể Ce:LiCAF được cắt góc Brewster (54⁰) có kích thước 5x5x8 mm, nồng độ pha tạp 1% mol được sử dụng làm môi trường khuếch đại. Tinh thể được bơm bằng hòa ba bậc bốn của laser Nd:YAG ở bước sóng 266 nm, tần số lặp lại 10 Hz và độ rộng xung là 7 ns. Để tăng mật độ công suất bơm, chùm laser bơm trước khi đến tinh thể được hội tụ bằng một thấu kính hội tụ, đường kính vết chùm bơm trên bề mặt tinh thể là 2 mm. Các gương phẳng từ R_1 đến R_{16} có hệ số phản xạ cao (trên 95%) trong vùng bước sóng từ 280 nm đến 320 nm được sử dụng để dẫn chùm laser tín hiệu.

Laser tín hiệu (laser tiền khuếch đại) từ bộ phát dao động được dẫn qua bộ chuẩn trực chùm được cấu tạo từ một thấu phân kỳ và một thấu kính hội tụ tiêu cự ngắn, chùm laser tín hiệu sau khi chuẩn trực có đường kính 1 mm. Laser tín hiệu sau khi phản xạ trên gương dẫn R₁ sẽ tới tinh thể khuếch đại Ce:LiCAF (khuếch đại lần thứ nhất), chùm laser sau khuếch đại lần thứ nhất sẽ phản xạ trên hai gương dẫn R₂, R₃ và trở thành laser tín hiệu cho lần khuếch đại thứ hai. Tương tự, xung laser sau khuếch đại lần thứ hai sẽ trở thành laser tín hiệu cho lần khuếch đai thứ ba.... Sau tám lần khuếch đại, chùm laser lối ra phản xạ trên gương dẫn R_{16} và được thu nhận. Với độ rộng xung bom 7 ns tương ứng với quang trình ~2,1 m, hệ khuếch đại được thiết kế với tám lần truyền qua trong một xung bơm. Laser bơm và quang trình của mỗi lần khuếch đại sẽ ảnh hưởng đến sự hồi phục của môi trường. Giả sử quang trình của lần khuếch đại thứ hai là 6 cm khi đó đô trễ giữa lần khuếch đai thứ hai so với lần khuếch đai thứ nhất là 0,2 ns. Tương tự, độ trễ thời gian giữa các lần khuếch đại tiếp theo được xác định theo cấu hình của hệ khuếch đại là 0,2; 0,3; 0,3, 0,4; 0,4; 0,5 ns. Do môi trường Ce:LiCAF có hiệu suất lượng tử cao nên môi trường được xem như hồi phục hoàn toàn giữa các lần khuếch đại khi công suất bơm cao hơn vài lần công suất bơm bão hòa và độ trễ giữa các lần khuếch đại như trên. Bên cạnh đó những phản xạ từ bề mặt tinh thể và phản xạ không hoàn toàn trên các bề mặt gương dẫn tới công suất chùm laser mất mát khoảng 15% trong môt lần khuếch đai.

Trong khuếch đại laser, sự chồng chập giữa laser bơm và laser tín hiệu (chiều dài khuếch đại hiệu dụng) sẽ ảnh hưởng lớn đến hiệu suất của quá trình khuếch đại. Với cấu hình khuếch đại nhiều lần truyền qua được chỉ ra trên Hình 2.1, chiều dài khuếch đại hiệu dụng là lớn nhất trong hai lần khuếch đại đầu tiên khi mà góc hợp bởi chùm laser bơm và chùm laser tín hiệu là nhỏ nhất. Chiều dài khuếch đại hiệu dụng này sẽ giảm xuống trong những lần khuếch đại kế tiếp khi mà góc giữa chùm laser bơm và laser tín hiệu bị mở rộng. Chiều dài khuếch đại hiệu dụng có thể được xác định theo công thức [66]:

$$l' = l - \frac{1}{4a} \left[l - atan\left(\frac{\Psi}{2}\right) \right]^2 \frac{tan\left(\frac{\Psi}{2}\right)}{1 - tan\left(\frac{\Psi}{2}\right)}.$$
(3.1)

trong đó *l* chiều dài tinh thể, *a* đường kính chùm bơm và Ψ góc giữa chùm laser bơm và chùm tín hiệu trong các lần khuếch đại. Từ sơ đồ thiết kế được chỉ ra trên Hình 2.1, góc lệch giữa chùm laser bơm và chùm laser tín hiệu trong tám lần khuếch đại lần lượt là 3⁰, 3⁰, 6⁰, 6⁰, 10⁰, 10⁰, 15⁰, 15⁰, 20⁰, 20⁰.

2.2. Mô hình lý thuyết cho khuếch đại laser

Thông thường trong khuếch đại laser, phương trình Franz-Nodvik được sử dụng để đánh giá sự phụ thuộc của năng lượng laser sau khuếch đại vào năng lượng laser tín hiệu. Sơ đồ khối biểu diễn quá trình khuếch đại các xung laser sử dụng phương trình Franz-Nodvik cổ điển được chỉ ra trên Hình 2.2.a. Trong đó, thông lượng laser sau khuếch đại J_i sẽ được xác định theo thông lượng laser tín hiệu J_{i-1} và độ khuếch đại ban đầu g_{i-1} . Sau mỗi lần khuếch đại, một phần năng lượng laser tích trữ ở trạng thái kích thích ΔJ sẽ chuyển thành năng lượng laser sau khuếch đại đầng thời độ khuếch đại ban đầu và năng lượng tích trữ ở trạng thái kích thích sẽ giảm được cập nhật lại. Do hệ số khuếch đại ban đầu không biểu diễn quá trình khuếch đại về mặt năng lượng của các xung laser đơn sắc. Tuy nhiên trong khuếch đại laser tín hiệu băng rộng, việc mô phỏng không chỉ yêu cầu xác định được năng lượng mà còn phải biểu diễn được các đặc trưng phổ laser sau khuếch đại, vấn đề này phương trình Franz-Nodvik cổ điển không thực hiện được [54].



Hình 2.2. Sơ đồ khối khuếch đại laser theo phương trình (a). Frantz-Nodvik cổ điển và (b). Frantz-Nodvik mở rộng [54].

Do vậy, Peter Kroetz và cộng sự (Viện nghiên cứu Max-Planck, Đức) đã đề xuất phương trình Frantz-Nodvik mở rộng, phương trình này định nghĩa một đại lượng mới là hệ số nghịch đảo độ tích lũy β , hệ số này tỉ lệ thuận với số ion ở trạng thái kích thích và được xác định bằng [39, 41, 54]:

$$\beta = \frac{n_e}{N}.\tag{2.1}$$

trong đó, n_e là số ion ở trạng thái kích thích, N là tổng số ion tham gia vào quá trình khuếch đại. Bằng việc định nghĩa hệ số nghịch đảo độ tích lũy β , các phương trình năng lượng của phương trình Frantz-Nodvik cổ điển được chuyển đổi thành các phương trình thông lượng phổ qua đó biểu diễn được đặc trưng về phổ laser sau mỗi lần khuếch đại. Sơ đồ khối biểu diễn quá trình khuếch đại laser theo phương trình Frantz-Nodvik mở rộng được chỉ ra trên Hình 2.1.b, khi xung laser tín hiệu đi qua môi trường khuếch đại, một phần năng lượng tích trữ ở trạng thái kích thích sẽ chuyển thành năng lượng laser sau khuếch đại đồng thời hệ số nghịch đảo tích lũy β sẽ giảm và được cập nhật sau mỗi lần khuếch đại [54].

Thông qua hệ số nghịch đảo độ tích lũy β , tiết diện khuếch đại ở bước sóng laser tín hoặc tiết diện hấp thụ ở bước sóng laser bơm có thể được xác định theo công thức [50]:

$$\sigma_{g,i-1}(\lambda) = \beta_i \big(\sigma_{em}(\lambda) + \sigma_{abs}(\lambda) \big) - \sigma_{abs}(\lambda).$$
(2.2)

trong đó, σ_g là tiết diện khuếch đại hoặc hấp thụ, σ_{em} là tiết diện phát xạ, σ_{abs} là tiết diện hấp thụ. Khi laser tín hiệu đi qua môi trường khuếch đại, hệ số khuếch đại một lần truyền qua được xác định bằng công thức [54]:

$$G_{i-1}(\lambda) = \exp(\sigma_{g,i-1}(\lambda)NL).$$
(2.3)

Như vậy, điểm khác biệt giữa phương trình Frantz-Nodvik mở rộng so với phương trình cổ điển là hệ số khuếch đại ban đầu cũng như thông lượng laser sau khuếch đại có thể được biểu diễn theo bước sóng thông qua việc xác định được hệ số nghịch đảo độ tích lũy β .

Thông lượng laser lối ra J_i sẽ tăng lên hoặc giảm xuống phụ thuộc vào môi trường hoạt chất là môi trường khuếch đại hoặc hấp thụ, thông lượng lối ra sẽ được liên hệ với thông lượng đầu vào $J_{i-1}(\lambda)$ theo công thức [54]:

$$J_i(\lambda) = J_{sat}(\lambda)T(\lambda)\ln\left[1 + G_{i-1}(\exp(\frac{J_{i-1}(\lambda)}{J_{sat}(\lambda)} - 1)\right].$$
 (2.4)

trong đó, T là hệ số truyền trong một lần khuếch đại (tỉ lệ năng lượng còn lại sau khi trừ đi những mất mát trong quá trình khuếch đại).

Thông lượng bão hòa được xác định bằng [54]:

$$J_{sat}(\lambda) = \frac{hc}{\lambda(\sigma_{em}(\lambda) + \sigma_{abs}(\lambda))}.$$
(2.5)

Hệ số nghịch đảo độ tích lũy β được cập nhật sau mỗi lần khuếch đại và được xác định bằng [54]:

$$\beta_{i} = \beta_{i-1} - \frac{\int \left[\lambda \left(\frac{J_{i}(\lambda)}{T(\lambda)} - J_{i-1}(\lambda)\right)\right] d\lambda}{hclN}.$$
(2.6)

Khi tính đến cả mất mát do phát xạ tự phát, nghịch đảo độ tích lũy sẽ giảm theo thời gian và được xác định bằng [54]:

$$\beta_i^* = \beta_i \exp(-\frac{\Delta t}{\tau}). \tag{2.7}$$

trong đó, τ là thời gian sống huỳnh quang và Δt là thời gian của mỗi lát cắt.

Quá trình hiệu chỉnh hệ số β do phát xạ tự phát có thể được bỏ qua khi xung bơm ngắn hơn đáng kể so với thời gian sống của điện tử ở trạng thái kích thích. Các phương trình từ (2.1) đến (2.5) sẽ mô tả quá trình khuếch đại hoặc hấp thụ một lần truyền qua. Hệ số nghịch đảo độ tích lũy được xác định theo công thức (2.6), hệ số này thể tăng hoặc giảm phụ thuộc vào quá trình đó là hấp thụ hay khuếch đại.

Quá trình mô phỏng khuếch đại xung laser một lần truyền qua bằng phương trình Franz-Nodvik mở rộng được mô hình hóa và chỉ ra trên Hình 2.3. Quá trình mô phỏng gồm ba bước:

- (1) Thông lượng laser tín hiệu đầu vào được chia thành những lát cắt theo những khoảng thời gian bằng nhau Δt .
- (2) Các lát cắt này liên tục đi qua môi trường khuếch đại, hệ số β được cập nhật sau mỗi lát cắt đi qua.
- (3) Thông lượng laser lối ra là tổng của các thông lượng thành phần sau quá trình khuếch đại.



Hình 2.3. Mô phỏng quá trình khuếch đại laser tín hiệu một lần truyền qua [54].

Việc mô phỏng khuếch đại các xung laser được thực hiện bằng phầm mềm Matlab, sơ đồ khối và các thông số đầu vào của mô phỏng được chỉ ra trên Hình 2.4.a. Đối với hệ khuếch đại nhiều lần truyền qua, xung laser tín hiệu sẽ đi nhiều lần qua một thể tích khuếch đại trong thời gian của một xung bơm. Xung laser lối ra của lần khuếch đại trước bị suy hao một phần do mất mát tuyến tính sẽ là tín hiệu cho lần khuếch đại tiếp theo [54].

Các thông số đầu vào của mô phỏng bao gồm:

- Laser born và laser tín hiệu: bước sóng, thông lượng, độ rộng phổ và độ rộng xung.
- Môi trường khuếch đại: tiết diện phát xạ $\sigma_{em}(\lambda)$ và tiết diện hấp thụ $\sigma_{abs}(\lambda)$ của môi trường khuếch đại theo bước sóng, chiều dài khuếch đại, thời gian sống huỳnh quang.
- Hệ số khuếch đại ban đầu β_0 . Tuy nhiên, việc lựa chọn hệ số khuếch đại ban đầu β_0 không quá quan trọng do sau một vài chu trình bơm hệ số khuếch đại ban đầu β_0 sẽ hội tụ về một giá trị.
- Hệ số truyền T hay là tỉ lệ năng lượng laser còn lại sau khi trừ đi các mất mát tuyến tính do phản xạ không hoàn toàn trên các mặt gương và phản xạ trên bề mặt tinh thể trong một lần truyền.

Laser tín hiệu đầu vào sẽ được chia thành các lát cắt với cùng khoảng thời gian như nhau. Hình 2.4.b mô tả quá trình mô phỏng khuếch đại của một lát cắt. Các lát

cắt sẽ lần lượt được đưa vào môi trường khuếch đại, thông lượng sau khuếch đại của mỗi lát cắt được xác định bằng phương trình (2.4), trong khi đó phương trình (2.6) và (2.7) sẽ cập nhật hệ số β sau khi mỗi lát cắt đi qua.



Hình 2.4. Sơ đồ khối cho quá trình mô phỏng khuếch đại xung laser [54].

2.3. Thông số sử dụng trong mô phỏng

2.3.1. Thông số của linh kiện và thiết bị quang

Các thông số sử dụng trong mô phỏng khuếch đại các xung laser UV sử dụng tinh thể Ce:LiCAF được lấy từ các linh kiện, thiết bị hiện có tại phòng thí nghiệm Quang tử - Viện Vật lý và được trình bày chi tiết trong Bảng 2.1. Các giá trị về thông lượng bão hòa của môi trường được tính toán theo công thức (2.5) ở bước sóng đỉnh phổ hấp thụ và đỉnh phổ phát xạ của môi trường Ce:LiCAF. Đối với các bước sóng nằm hai bên sườn của đỉnh phổ hấp thụ và phát xạ, thông lượng bão hòa sẽ có giá trị lớn hơn. Mô phỏng sẽ được thực hiện với số lát cắt của mỗi xung laser tín hiệu là 50

lát cắt. Bên cạnh đó, xung laser tín hiệu sẽ đến trễ hơn xung bơm một khoảng thời gian đủ để môi trường khuếch đại đạt trạng thái bão hòa và tám lần khuếch đại sẽ diễn ra trong thời gian của một xung bơm.

Bång 2.1.	Các thông s	ố linh kiện	và thiết bị s	ử dụng tron	ıg mô phỏng
0	0	•	•	• •	0 1 0

Tinh thể khuếch đại Ce:LiCAF [34, 67]				
Kích thước tinh thể	5x5x8 mm			
Nồng độ pha tạp ion Ce^{3+}	1 mol %, $5x10^{17}$ cm ⁻³			
Thời gian sống huỳnh quang	30 ns			
Thông lượng bão hòa tại bước sóng 266 nm	1,1 W/cm ²			
Thông lượng bão hòa tại bước sóng 288,5 nm	1,2 W/cm ²			
Tiết diện hấp thụ tại bước sóng 266 nm	$7,5x10^{-18}$ cm ²			
Tiết diện phát xạ tại bước sóng 266 nm	$0,1x10^{-18} \text{ cm}^2$			
Tiết diện hấp thụ tại bước sóng 288,5 nm	$0,4x10^{-18} \text{ cm}^2$			
Tiết diện phát xạ tại bước sóng 288,5 nm	$9,8x10^{-18}$ cm ²			
Laser bom				
Bước sóng	266 nm			
Độ rộng phổ (FWHM)	0,1 nm			
Độ rộng xung, τ	7 ns			
Đường kính chùm	2 mm			
Hệ số truyền trong một lần khuếch đại	0,85			
Góc giữa chùm laser bơm và laser tín hiệu cho các	3^0 , 3^0 , 6^0 , 6^0 , 10^0 , 10^0 ,			
lần khuếch đại từ 1 đến 8	$15^{0}, 15^{0}, 20^{0}, 20^{0}$			

2.3.2. Tiết diện khuếch đại và hấp thụ của môi trường Ce:LiCAF

Tiết diện hấp thụ hoặc khuếch đại của môi trường Ce:LiCAF trong quá trình khuếch đại sẽ phụ thuộc vào hệ số β hay chính là phụ thuộc vào số ion Ce³⁺ ở trạng thái kích thích. Trong trường hợp môi trường Ce:LiCAF được bơm bão hòa tại bước sóng 266 nm, số ion Ce³⁺ nằm ở trạng thái kích thích khi đó là lớn nhất và tiết diện khuếch đại là lớn nhất. Hệ số nghịch đảo độ tích lũy β trong trường hợp này được xác định bằng [51]:

$$\beta_{266} = \frac{\sigma_{abs}}{(\sigma_{em} + \sigma_{abs})} = 98,5\%.$$

Trường hợp trạng thái kích thích của môi trường Ce:LiCAF bị suy giảm hoàn toàn do phát xạ tại đỉnh phổ 288,5 nm thì số ion Ce³⁺ ở trạng thái cơ bản là lớn nhất và tiết diện hấp thụ của môi trường Ce:LiCAF trong điều kiện này là lớn nhất. Khi đó, hệ số nghịch đảo độ tích lũy tại bước sóng 288,5 nm được xác định là $\beta_{288,5} = 4,5\%$. Như vậy trong quá trình bơm và (hoặc) khuếch đại, hệ số β của môi trường Ce:LiCAF sẽ liên tục thay đổi nhưng luôn nằm trong khoảng $4,5 \le \beta \le 98,5$.



Hình 2.5. Tiết diện khuếch đại hoặc hấp thụ của môi trường Ce:LiCAF ở các giá trị β khác nhau.

Bằng việc sử dụng công thức (2.2), tiết diện hấp thụ và khuếch đại của môi trường Ce:LiCAF theo bước sóng ở các giá trị β khác nhau đã được xác định và chỉ ra trên Hình 2.5. Với giá trị β là 4,5%, tiết diện có giá trị trị âm (đường màu xanh) sẽ đặc trưng cho khả năng hấp thụ, trong khi đó với giá trị β là 98,5%, tiết diện có giá trị dương (đường màu đỏ) sẽ đặc trưng cho khả năng khuếch đại của môi trường Ce:LiCAF theo từng bước sóng.

2.4. Động học khuếch đại xung laser tử ngoại sử dụng tinh thể Ce:LiCAF

Để nghiên cứu các quá trình động học của bộ khuếch đại xung laser UV Ce:LiCAF, phương trình Frantz-Nodvik mở rộng đã được giải bằng phần mềm Matlab với các thông số đầu vào được chỉ ra trên Bảng 2.1.

2.4.1. Sự thay đổi của nghich đảo độ tích lũy trong quá trình bơm và khuếch đại

Hệ số nghịch đảo độ tích lũy β tỉ lệ thuận với số ion ở trạng thái kích thích, hệ số này cũng cho biết khả năng khuếch đại trước khi xung laser tín hiệu đến môi trường khuếch đại. Trong trường hợp chưa có laser bơm, giả sử hệ số nghịch đảo độ tích lũy trong môi trường khuếch đại bằng không, hệ số nghịch đảo độ tích lũy sẽ tăng khi môi trường khuếch đại được bơm. Để đánh giá ảnh hưởng công suất laser bơm lên hệ số nghịch đảo độ tích lũy, phương trình Frantz-Nodvik mở rộng được giải với công suất laser bơm lần lượt nhận các giá trị P_{pump} = 40, 80, 120, 160, 200 mW tương ứng bằng ~ 1, 2, 3, 4, 5 lần công suất bão hòa tại bước sóng laser bơm.



Hình 2.6. Ảnh hưởng của công suất laser bơm lên hệ số nghịch đảo độ tích lũy

Kết quả được chỉ ra trên Hình 2.6, với công suất laser bơm khác nhau thì quá trình thay đổi của hệ số nghịch đảo độ tích lũy trong môi trường khuếch đại là khác nhau. Công suất bơm càng lớn thì hệ số nghịch đảo độ tích lũy càng nhanh đạt đến trạng thái bão hòa. Tuy nhiên trong điều kiện thực tế, công suất laser bơm không thể tăng một cách tùy ý. Hơn nữa, việc tăng công suất laser bơm có thể dẫn tới tăng hiệu ứng phát xạ tự phát gây bất lợi cho quá trình khuếch đại. Bên cạnh đó để tăng hiệu suất khuếch đại, xung laser tín hiệu cần đến môi trường khuếch đại trễ hơn xung laser

bom một khoảng thời gian đủ để môi trường khuếch đại đạt đến trạng thái bão hòa. Với công suất bom khoảng là 200 mW thì cần khoảng thời gian 5 ns để môi trường khuếch đại đạt đến trạng thái bão hòa, trong khi đó với công suất bom 40 mW thì phải cuối xung bom môi trường khuếch đại mới đạt đến trạng thái bão hòa.



Hình 2.7. a) Nghịch đảo độ tích lũy sau mỗi lần khuếch đại. b). Hệ số nghịch đảo độ tích lũy trong từng lần khuếch đại $P_{in}=10^{-2}$ mW

Quá trình khuếch đại xảy ra khi laser tín hiệu đi qua môi trường khuếch đại, một phần năng lượng tích trữ ở trạng thái kích thích sẽ được trích xuất và thêm vào laser tín hiệu. Như vậy, cùng với quá trình khuếch đại năng lượng laser tín hiệu thì độ tích lũy ở trạng thái kích thích của môi trường khuếch đại sẽ giảm xuống sau mỗi lần khuếch đại. Để đánh giá được sự biến thiên của hệ số nghịch đảo độ tích lũy theo từng lần khuếch đại, xung laser tín hiệu có công suất $P_{in}=10^{-2}$ và 10^{-1} mW được đưa tới môi trường khuếch đại khi môi trường đang ở trạng thái bơm bão hòa, sự suy giảm của hệ số nghịch đảo độ tích lũy sau mỗi lần khuếch đại được chỉ ra trên Hình 2.7.(a). Do tín hiệu đầu vào nhỏ 10^{-2} mW, hệ số nghịch đảo độ tích lũy suy giảm không đáng kể trong ba lần khuếch đại đầu tiên, ở lần khuếch đại thứ tư và thứ năm sự suy giảm của hệ số này diễn ra rõ rệt hơn khi năng lượng laser tín hiệu đủ lớn. Ở những lần khuếch đại cuối, nghịch đảo độ tích lũy gần như suy giảm hoàn toàn, tương ứng với năng lượng tích trữ ở trạng thái kích thích gần như cạn kiệt. Trong khi đó với laser tín hiệu có công suất mạnh hơn 10^{-1} mW, sự suy giảm năng lượng tích trữ ở trạng thái kích thích diễn ra rõ rệt ngay từ những lần khuếch đại đầu tiên.

Chi tiết về sự thay đổi của hệ số nghịch đảo độ tích lũy khi xung laser tín hiệu đi qua môi trường khuếch đại được chỉ ra trên Hình 2.7.(b). Trước khi xung laser tín hiệu đến môi trường khuếch đại lần đầu tiên, môi trường đang ở trạng thái bão hòa bơm, trong khi đó giữa các lần khuếch đại, môi trường được xem như hồi phục hoàn toàn. Như vậy hệ số nghịch đảo độ tích lũy trước mỗi lần khuếch đại là 98,5%. Xung laser tín hiệu đầu vào sẽ được chia thành 50 lát cắt với khoảng thời gian mỗi lát cắt bằng nhau, khi các lát cắt đi qua môi trường khuếch đại đầu khi laser tín hiệu là nhỏ và nghịch đảo độ tích lũy trong môi trường là lớn, sự suy giảm nghịch đảo độ tích lũy gần như tuyến tính theo số lát cắt được khuếch đại. Trong khi đó ở các lần khuếch đại tiếp theo khi xung laser tín hiệu đủ lớn, nghịch đảo độ tích lũy sẽ suy giảm nhanh khi các lát cắt đầu được khuếch đại và sẽ chậm dần ở các lát cắt tiếp sau.

2.4.2. Ảnh hưởng của công suất laser bom lên công suất laser sau khuếch đại

Để đánh giá ảnh hưởng của công suất laser bơm lên công suất laser sau khuếch đại, phương trình Frantz-Nodvik mở rộng được giải với thông số của laser tín hiệu

được giữ không đổi, trong khi đó laser bơm nhận các giá trị công suất khác nhau. Thông số chi tiết của laser tín hiệu và laser bơm như sau:

- Laser tín hiệu có dạng Gauss độ rộng xung 3 ns, công suất là 1 mW tương ứng với mật độ công suất là 0,02 W/cm², nhỏ hơn nhiều so với mật độ công suất bão hòa tại bước sóng 288,5 nm. Laser tín hiệu có độ rộng phổ là 1,0 nm và đỉnh phổ tại bước sóng 288,5 nm.
- Laser bom tại bước sóng 266 nm có công suất lần lượt nhận các giá trị 120 mW, 160 mW, 240 mW tương ứng bằng 3, 4 và 6 lần mật độ công suất bom bão hòa.



Hình 2.8. Ảnh hưởng của công suất bơm lên công suất laser sau khuếch đại $P_{in}=1 \text{ mW}, P_{pump}=120, 160, 200 \text{ mW}.$

Kết quả khảo sát ảnh hưởng của laser bơm lên công suất laser lối ra được chỉ ra trên Hình 2.8. Trong trường hợp công suất laser tín hiệu đưa vào bộ khuếch đại là nhỏ và công suất laser bơm cao hơn bốn lần so với công suất bơm bão hòa, bộ khuếch đại sẽ hoạt động ở chế độ tuyến tính, công suất laser lối ra tăng sau mỗi lần khuếch đại. Với cùng công suất laser tín hiệu 1 mW, công suất laser sau tám lần khuếch đại là 54 mW, 60 mW, 62 mW tương ứng với công suất laser bơm lần lượt là 120 mW, 160 mW và 240 mW. Như vậy, công suất laser sau tám lần khuếch đại sẽ tăng khi công suất laser bơm tăng, nguyên nhân do công suất laser bơm tăng thì độ khuếch đại

của môi trường cũng tăng dẫn tới công suất laser sau khuếch đại tăng. Tuy nhiên, sự thay đổi của công suất laser sau khuếch đại khi tinh thể được bơm ở công suất 160 mW và 240 mW là không đáng kể. Do đó, công suất laser bơm được lựa chọn ở mức 160 mW ở các nghiên cứu tiếp.

2.4.3. Ảnh hưởng của công suất laser tín hiệu lên công suất laser sau khuếch đại

Để đánh giá ảnh hưởng của công suất laser tín hiệu lên công suất laser sau khuếch đại, mô phỏng được thực hiện với thông số của laser bơm ở bước sóng 266 nm, công suất 160 mW được giữ không đổi. Trong khi đó, laser tín hiệu có đỉnh phổ ở bước sóng 288,5 nm, độ rộng phổ 1,0 nm và công suất trung bình lần lượt nhận các giá trị 10⁻² mW, 1 mW và 30 mW.

Kết quả mô phỏng được chỉ ra trên Hình 2.9.(a) cho thấy, trong trường hợp tín hiệu yếu 10⁻² mW hoặc 1 mW (công suất nhỏ hơn nhiều so với công suất bão hòa tại bước sóng 288,5 nm) quá trình khuếch đại là tuyến tính, công suất laser tăng sau mỗi lần khuếch đại. Công suất laser tín hiệu là 10⁻² mW và 1 mW sẽ tương ứng với công suất laser sau tám lần khuếch đại lần lượt là 42 mW (hệ số khuếch đại là 4200) và 62 mW (hệ số khuếch đại là 62). Trong trường hợp xung laser tín hiệu có công suất 30 mW (~ 0,8 lần công suất bão hòa tại bước sóng 288,5 nm), quá trình khuếch đại không còn là tuyến tính, sau 4 lần khuếch đại môi trường gần như trong suốt và công suất chùm laser gần như không đổi trong các lần khuếch tiếp theo.

Hệ số khuếch đại chi tiết cho từng lần truyền qua được chỉ ra trên Hình 2.9.(b). Với xung tín hiệu có công suất là 30 mW hệ số khuếch đại sau mỗi lần truyền qua là 1,4; 1,3; 1,2; 1,1; 1,0; 1,0; 1,0; 1,0. Trong khi đó với xung tín hiệu 1 mW, hệ số khuếch đại trong tám lần truyền qua lần lượt là 5,5; 3,2; 2,0; 1,8; 1,6; 1,5; 1,4; 1,3. Như vậy, hệ số khuếch đại có xu hướng giảm khi công suất chùm laser tín hiệu tăng và khuếch đại laser chỉ hiệu quả trong một vài lần khuếch đại đầu khi công suất chùm laser lối ra chưa đạt đến trạng thái bão hòa. Nguyên nhân do chùm laser tín hiệu nhỏ chỉ gây suy giảm một phần năng lượng tích trữ ở trạng thái kích thích, trong khi đó với xung laser tín hiệu có năng lượng đủ lớn sẽ gây suy giảm toàn bộ năng lượng tích trữ ở trạng thái kích thích dẫn tới quá trình khuếch đại tiếp theo sẽ không còn hiệu quả. Kết quả này là có ý nghĩa, cho phép thiết kế các hệ khuếch đại phù hợp nhằm khai thác tối đa



Hình 2.9. Ảnh hưởng của công suất laser tín hiệu lên a). Công suất laser sau khuếch đại và b). Hệ số khuếch đại. $P_{in}=10^{-2}$ mW, 1 mW, 30 mW.

2.4.4. Ånh hưởng của bước sóng laser tín hiệu lên công suất laser sau khuếch đại

Môi trường tinh thể Ce:LiCAF đã được chứng minh là hiệu quả trong việc phát các bức xạ laser UV, băng hẹp và điều chỉnh bước sóng trên dải phổ rộng từ 281-315 nm. Do đó, ảnh hưởng của bước sóng laser tín hiệu lên công suất laser sau khuếch đại cũng đã được khảo sát với các thông số của laser bơm và laser tín hiệu như sau:

- Laser born có công suất 160 mW ở bước sóng 266 nm được giữ không đổi trong quá trình mô phỏng.
- Laser tín hiệu có dạng Gauss, độ rộng xung 3 ns và công suất trung bình là 1 mW. Laser tín hiệu có cùng độ rộng phổ là 1,0 nm nhưng đỉnh phổ ở các bước sóng khác nhau 288,5 nm, 295 nm, 300 nm, 310 nm và 312 nm.



Hình 2.10. Ånh hưởng của bước sóng laser tín hiệu lên công suất laser sau khuếch đại, $P_{in}=1$ mW, $\lambda=288,5, 295, 300$ và 312 nm.

Kết quả khảo sát được chỉ ra trên Hình 2.10 cho thấy, công suất laser sau tám lần khuếch đại lớn nhất là 62 mW tại bước sóng 288,5 nm tương ứng với hệ số khuếch đại 62. Công suất laser sau khuếch đại tại bước sóng 312 nm là bé nhất, 24 mW tương ứng với hệ số khuếch đại là 24. Công suất laser sau khuếch đại tại bước sóng laser tín hiệu 295 nm và 300 nm lần lượt là 52 mW (hệ số khuếch đại 52) và 32 mW (hệ số khuếch đại 32).

Bước sóng laser tín hiệu (nm)	Tiết diện khuếch đại (x10 ⁻²² m ²)	Công suất laser sau KĐ (mW)	Hệ số khuếch đại
288,5	5,8	62	62
295,0	4,0	52	52
300,0	2,2	32	32
312,0	1,8	24	24

Bảng 2.2. Công suất laser sau khuếch đại và hệ số khuếch đại ở các bước sóng laser tín hiệu khác nhau.

Như vậy, bước sóng laser tín hiệu càng gần đỉnh phát xạ của môi trường Ce:LiCAF thì công suất laser sau khuếch đại càng lớn. Nguyên nhân do bước sóng laser tín hiệu càng gần đỉnh phát xạ của môi trường Ce:LiCAF thì tiết diện khuếch đại (Hình 2.5) càng lớn, chi tiết về tiết diện khuếch đại cũng như công suất và hệ số khuếch đại theo bước sóng laser tín hiệu được chỉ ra trên Bảng 3.2.

2.4.5. Ảnh hưởng của độ rộng phổ laser tín hiệu lên phổ laser sau khuếch đại

Một trong những ưu điểm của phương trình Franz-Nodvik mở rộng là khảo sát được toàn miền phổ laser tín hiệu do đó cho phép khảo sát được các hiệu ứng phổ trong quá trình khuếch đại laser. Để đánh giá hiệu ứng phổ trong quá trình khuếch đại các thông số đưa vào mô phỏng như sau:

- Laser bom như công suất trung bình 160 mW ở bước sóng 266 nm được giữ không đổi.
- Laser tín hiệu băng rộng có độ rộng phổ là 10 nm, đỉnh phổ tại bước sóng 288,5 nm và công suất trung bình là 1 mW.

Kết quả khảo sát được chỉ ra trên Hình 2.11.(a) cho thấy, laser sau mỗi lần khuếch đại có cường độ phổ tăng lên nhưng đỉnh phổ vẫn giữ không đổi tại bước sóng 288,5 nm. Độ rộng phổ laser sau mỗi lần khuếch đại đã bị thu hẹp lại, phổ laser tín hiệu rộng 10 nm sau tám lần khuếch đại đã bị thu hẹp về 3,5 nm, Hình 2.11.(b). Điều này được giải thích do tiết diện khuếch đại tại đỉnh phổ 288,5 nm lớn hơn so với hai bên sườn phổ do đó phần năng lượng khuếch đại được thêm vào đỉnh phổ là lớn hơn so với hai bên sườn phổ.



Hình 2.11.a). Phổ laser tín hiệu và phổ laser sau từng lần khuếch đại. b). Phổ laser tín hiệu và laser sau 8 lần khuếch đại.

Để khảo sát được ảnh hưởng của độ rộng phổ laser tín hiệu lên phổ laser sau khuếch đại, mô phỏng được thực hiện với laser tín hiệu có đỉnh phổ ở bước sóng 288,5 nm, nhưng độ rộng phổ sẽ nhận cá giá trị khác nhau lần lượt là 1 nm, 3 nm, 5 nm, 7 nm và 10 nm. Kết quả khảo sát được chỉ ra trên Hình 2.12 cho thấy, phổ laser tín hiệu càng rộng thì hiệu ứng thu hẹp phổ trong quá trình khuếch đại càng thể hiện rõ. Sau tám lần khuếch đại, phổ laser tín hiệu có độ rộng lần lượt là 10 nm, 7 nm và 5 nm đã thu hẹp còn 3,5 nm, 3,3 nm và 3,0 nm. Tuy nhiên, với độ rộng phổ laser tín hiệu nhỏ hơn 3 nm thì hiệu ứng thu hẹp vạch phổ gần như không đánh kể.



Hình 2.12. Phổ laser sau từng lần khuếch đại, λ=288,5 nm, FWHM=1 nm, 3 nm, 5 nm, 7 nm, 10 nm.

2.4.6. Dịch đỉnh phổ laser tín hiệu trong quá trình khuếch đại

Laser tín hiệu có bước sóng nằm trong vùng 280 – 320 nm có thể thu được từ việc biến đổi tần số các laser màu phát trong vùng bước sóng nhìn thấy hoặc laser toàn rắn pha tạp ion Titanium phát trong vùng hồng ngoại. Do đó, đỉnh phổ của laser tín hiệu có thể không trùng với đỉnh phổ phát xạ của môi trường khuếch đại Ce:LiCAF, khi đó quá trình khuếch đại có thể làm dịch đỉnh phổ laser tín hiệu. Để khảo sát hiện tượng này chúng tôi đi giải phương trình Frantz-Nodvik mở rộng với

thông số của laser tín hiệu như sau: độ rộng phổ của là 10 nm với bước sóng nằm trong khoảng từ 280 đến 305 nm và đỉnh phổ tại bước sóng 292 nm, laser tín hiệu có dạng Gauss độ rộng xung 3 ns và công suất trung bình chùm tia là 1 mW. Nguồn bơm cho hệ khuếch đại vẫn là họa ba bậc bốn của laser Nd:YAG ở bước sóng ở 266 nm và có công suất 160 mW. Kết quả được chỉ ra trên Hình 2.13. Ta thấy rằng sau tám lần khuếch đại, đỉnh phổ laser lối ra đã dịch 3 nm về bước sóng 289 nm so với laser tín hiệu, đồng thời độ rộng phổ laser cũng bị thu hẹp lại



Hình 2.13. Hiệu tượng thu hẹp phổ trong quá trình khuếch đại $P_{in}=1 \text{ mW}, \lambda=292 \text{ nm}, FWHM=10 \text{ nm}.$

Nguyên nhân của hiện tượng dịch đỉnh phổ là do môi trừng Ce:LiCAF có tiết diện khuếch đại lớn nhất tại bước sóng 288,5 nm và giảm dần về hai bên sườn phổ, do đó sau mỗi lần khuếch đại phổ laser có xu hướng dịch về phía đỉnh phát xạ. Điều này cũng dẫn tới phổ laser sau khuếch đại có xu hướng ưu tiên sườn trước và phổ laser sau khuếch đại có xu hướng ru tiên sườn trước và phổ laser sau khuếch đại không còn có dạng Gauss. Chi tiết về dạng phổ laser cũng như quá trình dịch đỉnh phổ sau từng lần khuếch đại được chỉ ra trên Hình 2.14.



Hình 2.14. phổ laser sau từng lần khuếch đại

KÉT LUÂN CHƯƠNG 2

Trong chương 2 bằng việc giải phương trình khuếch đại Frantz-Nodvik mở rộng, động học phổ cho bộ khuếch đại Ce:LiCAF tám lần truyền qua đã được nghiên cứu tường minh, các kết quả đạt được bao gồm:

- Đánh giá được ảnh hưởng của công suất laser bơm, cũng như công suất và bước sóng laser tín hiệu lên công suất laser sau từng lần khuếch đại.
- Hiện tượng thu hẹp phổ trong quá trình khuếch đại đã được chứng minh. Chùm laser tín hiệu có đỉnh phổ ở bước sóng 288,5 nm và độ rộng phổ 10 nm sau tám lần khuếch đại đã bị thu hẹp về 3,5 nm. Laser tín hiệu có độ rộng phổ lớn thì hiện tượng thu hẹp phổ càng thể hiện rõ rệt. Trong khi đó, hiện tượng thu hẹp phổ trong quá trình khuếch đại gần như không đáng kể với laser tín hiệu có độ rộng phổ dưới 3 nm.
- Hiện tượng dịch đỉnh phổ trong quá trình khuếch đại cũng đã được khảo sát, laser tín hiệu có độ rộng phổ 10 nm và đỉnh phổ tại bước sóng 292 nm sau tám lần khuếch đại đã dịch 3 nm về phía gần đỉnh phát xạ của môi trường Ce:LiCAF.

Các kết quả nghiên cứu đạt được cho thấy khả năng hoạt động của bộ khuếch đại các xung laser UV sử dụng tinh thể Ce:LiCAF. Các kết quả này là tiền đề để xây dựng hệ khuếch đại các xung laser UV nhiều lần truyền qua sử dụng tinh thể Ce:LiCAF trong thực nghiệm.

CHƯƠNG 3

KHUẾCH ĐẠI XUNG LASER TỬ NGOẠI SỬ DỤNG TINH THỂ Ce:LiCAF

Chương 3 trình bày việc phát triển hệ khuếch đại các xung laser UV sử dụng tinh thể Ce:LiCAF dựa trên các trang thiết bị hiện có tại tại Trung tâm Điện tử học lượng tử - Viện Vật lý, nội dung chính bao gồm:

- Phát triển một hệ khuếch đại các xung laser UV băng rộng bốn lần truyền qua với xung laser tín hiệu băng rộng thu được từ hệ laser UV Ce:LiCAF cấu hình BCH Fabry-Perot.
- Phát triển hệ khuếch đại các xung laser UV băng hẹp bốn lần truyền qua với xung laser tín hiệu băng hẹp thu được từ các hệ laser UV Ce:LiCAF cấu hình BCH Littrow và Littman.

Hơn nữa, các kết quả phát triển hệ thực nghiệm cũng đã được so sánh và cho thấy sự thống nhất cao với các kết quả mô phỏng bằng phương trình Frantz-Nodvik mở rộng đã được trình bày trong chương 2 [64, 68, 69].

3.1. Phát triển hệ khuếch đại xung laser tử ngoại băng rộng sử dụng tinh thể Ce:LiCAF

3.1.1. Cấu hình hệ khuếch đại

Sơ đồ hệ phát và hệ khuếch đại các xung laser UV sử dụng tinh thể Ce:LiCAF được chỉ ra trên Hình 3.1. Trong cấu hình này, họa ba bậc bốn của laser Nd:YAG (Lotis II) tại bước sóng 266 nm với công suất 1,2 W, tần số lặp lại 10 Hz được sử dụng làm nguồn laser bơm. Công suất chùm laser bơm được chia thành hai phần bằng tấm chia chùm F, một phần năng lượng bơm cho hệ phát và phần còn lại cho hệ khuếch đại. Các gương từ M_1 đến M_5 là gương điện môi, có hệ số phản xạ cao ở bước sóng 266 nm được sử dụng làm gương dẫn chùm laser bơm.

Hệ laser Ce:LiCAF phát xung tín hiệu băng rộng sử dụng BCH Fabry-Perot được cấu tạo bởi hai gương điện môi phẳng, gương cuối R_1 có hệ số phản xạ cao và gương ra R_2 phản xạ một phần trong vùng bước sóng 280-320 nm. Môi trường hoạt chất là tinh thể Ce:LiCAF được chế tạo bằng phương pháp Czochralski tại Đại học Tohoku, Nhật Bản. Kích thước của tinh thể là 20x10x10 mm, nồng độ pha tạp 1% mol. Nhằm tránh hiện tượng mất mát do phản xạ trên bề mặt, tinh thể được cắt góc Brewster 54°. Thấu kính hội tụ L₁ có tiêu cự f=30 cm được sử dụng để hội tụ chùm laser bơm giúp tăng mật độ công suất bơm. Thấu kính được đặt trước tinh thể một khoảng 24 cm, khi đó vết hộ tụ sẽ nằm sau tinh thể giúp tránh phá hủy tinh thể. Với cấu hình bơm xiên, hiệu suất chuyển đổi laser phụ thuộc vào sự chồng chập không gian giữa chùm laser bơm và chùm laser tín hiệu bên trong tinh thể. Để tăng hiệu suất chuyển đổi laser, góc lệch giữa chùm bơm và trục quang học của BCH sẽ được hiệu chỉnh sao cho nhỏ nhất. Chùm laser sau khi ra khỏi BCH được chuẩn trực bằng hai thấu kính L₃ (f=-10 cm), L₄ (f=10 cm) sau đó được đưa đến bộ khuếch đại.



Hình 3.1. Sơ đồ hệ phát và khuếch đại các xung laser tử ngoại, băng rộng, bốn lần truyền qua sử dụng tinh thể Ce:LiCAF.

Hệ khuếch đại laser bốn lần truyền qua được cấu tạo bởi tám gương từ R₄ đến R₁₁ có hệ số phản xạ trên 95% tại vùng bước sóng từ 280 nm đến 320 nm của hãng Thorlab. Tinh thể khuếch đại Ce:LiCAF được chế tạo bằng phương pháp Czochralski tại Đại học Tohoku, Nhật Bản. Tinh thể có kích thước 5x5x8 mm được cắt góc Brewster, nồng độ pha tạp 1% mol. Để tăng mật độ công suất bơm cho tinh thể khuếch đại, chùm laser bơm sau khi phản xạ qua các gương dẫn M₃, M₄ được hội tụ vào tinh thể nhờ thấu kính L₂ có tiêu cự *f*=40 cm. Để tránh phá hủy tinh thể, thấu kính được đặt trước

tinh thể khoảng 30 cm khi đó vết hội tụ sẽ nằm sau tinh thể khuếch đại. Chùm lase tín hiệu sau khi được chuẩn trực sẽ được dẫn tới bộ khuếch đại, độ trễ của laser tín hiệu so với laser bom là 1,5 ns. Quang trình của laser tín hiệu đi trong bộ khuếch đại là 104 cm, với độ trễ thời gian của các lần khuếch đại thứ 2, 3 và 4 so với lần trước đó lần lượt là 1,5; 0,9 và 1,0 ns.

Thông số chi tiết của tinh thể Ce:LiCAF cũng như những linh kiện quang học sử dụng cho hệ khuếch đại được trình bày trong Bảng 3.1.

Tinh thể Ce:LiCAF [31, 67]			
Nồng độ ion Ce ³⁺	1% mol; 5x10 ¹⁷ cm ⁻³		
Trục quang học	c-axis		
Độ hấp thụ tại 266 nm	4 cm^{-1}		
Chiết suất	1,41		
Thời gian sống huỳnh quang	30 ns		
Góc Brewster	54°		
Kích thước tinh thể	20x10x10 mm (tinh thể bộ phát dao động)		
	5x5x8 mm (tinh thể bộ khuếch đại)		
Hệ số phản xạ gương BCH	$R_1 = 96\%$, $R_2 = 30\%$ (280-320 nm)		
Hệ số phản xạ của gương bơm	Phản xạ trên 99% (262-266 nm, 0° - 45°)		
$(M_1 \div M_5)$			
Hệ số phản xạ của gương hệ	Phản xạ trên 90% (280-320 nm, 0° - 45°)		
khuếch đại (R ₄ ÷ R ₁₁)			
Thấu kính bơm	L ₁ =30 cm, L ₂ =40 cm (245-400 nm)		
Bộ chuẩn trực	L ₃ =-10 cm, L ₄ =10 cm (245-400 nm)		

Bảng 3.1. Các thông số của môi trường Ce:LiCAF và linh kiện quang học sử dụng cho hệ khuếch đại

Bên cạnh đó, một số trang thiết bị được sử dụng để khảo sát đặc trưng quang học của hệ khuếch đại bao gồm:

- Máy quang phổ Avaspec với dải phổ đo từ 200 nm đến 385 nm, độ phân giải
 0,6 nm được sử dụng để đánh giá các đặc trưng về phổ laser.
- Máy đo công suất Coherent có dải công suất đo từ 1mW đến 30 W, độ phân giải 1 mW, ngưỡng phá hủy 6 KW/cm² (1,75 J/cm²) được sử dụng để khảo sát công suất laser.
- Photodiode Hamamatsu S9055 với thời gian đáp ứng 250 ps kết hợp với dao động ký số 5 GHz của hãng Lecroy được sử dụng để đánh giá xung laser.

3.1.2. Đặc trưng phát xạ của hệ laser tín hiệu Ce:LiCAF sử dụng cấu hình buồng cộng hưởng Fabry-Perot

Các đặc trưng của xung laser tín hiệu như phổ, thời gian và năng lượng sẽ ảnh hưởng trực tiếp đến quá trình phát triển của xung trong bộ khuếch đại. Do vậy, việc nghiên cứu đặc trưng phát xạ của bộ phát xung tín hiệu là cần thiết. Dựa trên sơ đồ thí nghiệm đã trình bày ở Mục 3.1.1, hệ laser Ce:LiCAF sử dụng cấu hình BCH Fabry-Perot phát các xung laser tín hiệu UV băng rộng đã được phát triển và được chỉ ra trên Hình 3.2. BCH laser có chiều dài 5 cm được cấu tạo gồm gương cuối có hệ số phản xạ 96% và gương ra có hệ số phản xạ 30% tại bước sóng laser. Chùm laser bơm lệch góc 15° so trục quang học của BCH và đường kính vết chùm laser bơm trên bề mặt tinh thể là 2 mm.



Hình 3.2. Hệ laser UV Ce:LiCAF sử dụng cấu hình BCH Fabry-Perot.

Sự phụ thuộc của công suất laser lối ra vào công suất laser bơm đã được khảo sát và chỉ ra trên Hình 3.3. Kết quả cho thấy, hệ laser UV Ce:LiCAF sử dụng cấu hình BCH Fabry-Perot có ngưỡng phát laser ở 25 mW. Tăng dần công suất laser bơm và khảo sát công suất laser lối ra, kết quả cho thấy hệ laser có hiệu suất là 19,5%, công suất laser lối ra lớn nhất thu được là 18 mW tại công suất bơm là 120 mW. Với công suất laser bơm lớn hơn thì công suất laser lối ra của hệ có thể đạt được kết quả cao hơn, tuy nhiên các hiệu ứng nhiệt trong tinh thể khi bơm ở công suất cao có thể gây biến dạng chùm laser lối ra hoặc phá hủy tinh thể.



Hình 3.3. Sự phụ thuộc của công suất laser lối ra vào công suất laser bơm (cấu hình BCH Fabry-Perot).

Để khảo sát các đặc trưng phổ và xung laser lối ra cho cấu hình BCH Fabry-Perot, công suất laser bơm được giữ không đổi ở giá trị 60 mW tương ứng lớn hơn ngưỡng phát laser cỡ 2 lần. Ở mức công suất laser bơm này, hệ laser hoạt động ổn định với công suất laser lối ra thu được là 8 mW. Độ rộng xung laser lối ra là 3,1 ns được chỉ ra trên Hình 3.4.a. Laser lối ra có độ rộng phổ là 2,0 nm nằm trong khoảng bước sóng từ 286 nm đến 291 nm với đỉnh phổ tại bước sóng 288,5 nm được chỉ ra trên Hình 3.4.b.


Hình 3.4.(a) Độ rộng xung và (b) độ rộng phổ laser lối ra (cấu hình BCH Fabry-Perot).

3.1.3. Khuếch đại xung laser tử ngoại băng rộng sử dụng tinh thể Ce:LiCAF

Dựa trên cấu hình của hệ đã được trình bày trên Mục 3.1.1, hệ phát và khuếch đại các xung laser UV băng rộng bốn lần truyền qua sử dụng tinh thể Ce:LiCAF đã được phát triển và chỉ ra trên Hình 3.5.



Hình 3.5. Hệ phát và khuếch đại các xung laser UV băng rộng, bốn lần truyền qua sử dụng tinh thể Ce:LiCAF.

Hệ laser Ce:LiCAF phát xung tín hiệu UV băng rộng sử dụng BCH Fabry-Perot đã được trình bày trên Mục 3.1.2, bức xạ lối ra có độ rộng phổ 2,0 nm, đỉnh phổ phát xạ tại bước sóng 288,5 nm và độ rộng xung là 3,1 ns. Sau khi đi qua bộ chuẩn trực, đường kính chùm laser là 1 mm và công suất là 7 mW, chùm laser tín hiệu sau đó được đưa tới bộ khuếch đại thông qua các gương dẫn. Laser bom cho hệ khuếch đại ở bước sóng 266 nm có công suất là 160 mW, đường kính vết chùm bom trên bề mặt tinh thể khuếch đại là 2 mm. Thông số đặc trưng của xung laser tín hiệu cũng như xung laser sau bốn lần khuếch đại đã được khảo sát và trình bày trên Bảng 3.2.

Bảng 3.2. Thông số xung laser tín hiệu và xung laser sau bốn lần khuếch đại (hệ khuếch đại các xung laser UV băng rộng).

Thông số	Xung laser tín hiệu	Xung laser sau khuếch đại
Công suất (mW)	7,0	54
Bước sóng (nm)	288,5	288,5
FWHM (nm)	2,0	2,0
Độ rộng xung (ns)	3,1	3,1

Phổ và xung laser sau bốn lần khuếch đại được chỉ ra trên Hình 3.6. Kết quả cho thấy, phổ laser sau khuếch đại không thay đổi so với phổ laser tín hiệu, laser sau khuếch đại vẫn có đỉnh phổ tại bước sóng 288,5 nm và độ rộng phổ cỡ 2 nm, các kết quả này là phù hợp với các kết quả nghiên cứu bằng mô phỏng đã được thực hiện trong Mục 2.4.5, chương 2. Độ rộng xung laser sau khuếch đại là 3,1 ns không thay đổi so với xung laser tín hiệu đầu vào.



Hình 3.6.(a) Độ rộng xung và (b) độ rộng phổ laser sau khuếch đại.

Khảo sát công suất laser trong quá trình khuếch đại cho thấy, laser tín hiệu có công suất 7 mW, sau bốn lần khuếch đại công suất laser lối ra là 54 mW tương ứng

với hệ số khuếch đại là 7,7. Chi tiết về công suất cũng như hệ số khuếch đại trong mỗi lần truyền qua được chỉ ra trên Hình 3.7. Kết quả thực nghiệm (đường màu đen) cho thấy, công suất laser lối ra sau mỗi lần khuếch đại lần lượt là 18 mW, 31 mW, 44 mW và 54 mW tương ứng với hệ số khuếch đại ở lần truyền qua thứ nhất là 2,5, lần thứ hai là 1,7, lần thứ ba là 1,4 và lần thứ tư là 1,3. Hơn thế nữa bằng việc giải phương trình Frantz-Nodvik mở rộng cho hệ khuếch đại với các thông số đầu vào lấy từ thực nghiệm, công suất laser sau từng lần khuếch đại theo mô phỏng (đường màu đỏ trên Hình 3.7) cũng đã được xác định. Kết quả cho thấy có sự phù hợp tốt giữa kết quả thực nghiệm và mô phỏng với sai lệch khoảng 5%.



Hình 3.7. Kết quả mô phỏng và thực nghiệm khuếch đại các xung laser băng rộng

Như vậy một hệ khuếch đại các xung laser UV băng rộng bốn lần truyền qua sử dụng tinh thể Ce:LiCAF đã được phát triển với công suất laser lối ra đạt được là 54 mW tương ứng với thông lượng laser sau khuếch đại là 6 W/cm². Nếu tiếp tục tăng số lần khuếch đại lên 5 lần hoặc 6 lần ... thì công suất đạt được sau khuếch đại sẽ lớn hơn. Tuy nhiên, các gương dẫn chùm laser tín hiệu là các gương mạ nhôm có ngưỡng phá hủy thấp nếu thông lượng laser sau khuếch đại tiếp tục tăng có thể dẫn tới phá hủy gương. Việc mở rộng chùm laser tín hiệu nhằm giảm thông lượng laser sau khuếch đại cũng không khả thi do kích thước bề mặt tinh thể khuếch đại có giới hạn. Hơn nữa khi tăng kích thước chùm laser tín hiệu thì việc hiệu chỉnh sự chồng chập giữa chùm laser bơm và chùm laser tín hiệu trong tinh thể khuếch đại sẽ khó khăn hơn. Do vậy, số lần truyền qua của hệ khuếch đại được thiết kế là bốn lần.

3.2. Phát triển hệ khuếch đại xung laser tử ngoại băng hẹp sử dụng tinh thể Ce:LiCAF

3.2.1. Cấu hình hệ khuếch đại

Hệ khuếch đại các xung laser UV băng hẹp sử dụng tinh thể Ce:LiCAF được chỉ ra trên Hình 3.8. So với cấu hình hệ khuếch đại các xung laser UV băng rộng đã trình bày trong Mục 3.1.1, hệ khuếch đại các xung laser UV băng hẹp có cấu tạo tương tự. Tuy nhiên, hệ laser phát xung tín hiệu băng rộng sử dụng BCH Fabry-Perot trong cấu hình khuếch đại băng rộng đã được thay thế bằng các hệ laser phát tín hiệu băng hẹp điều chỉnh bước sóng sử dụng cấu hình BCH Littrow hoặc BCH Littman.



Hình 3.8. Sơ đồ hệ khuếch đại các xung laser tử ngoại, băng hẹp, bốn lần truyền qua sử dụng tinh thể Ce:LiCAF.

3.2.2. Laser tín hiệu băng hẹp sử dụng cấu hình buồng cộng hưởng Littrow 3.2.2.1. Cấu hình BCH Littrow

Sơ đồ hệ laser UV Ce:LiCAF phát xung tín hiệu băng hẹp điều chỉnh bước sóng sử dụng BCH Littrow được chỉ ra trên Hình 3.9. Cấu tạo BCH Littrow gồm cách tử nhiễu xạ G và gương ra R₂, chùm laser trong BCH sau khi nhiễu xạ trên bề mặt cách tử sẽ phản xạ ngược trở lại cùng phương với chùm laser tới. Do đó, cách tử sẽ đóng vai trò làm gương cuối BCH đồng thời chọn lọc bước sóng nhiễu xạ quay trở lại tinh thể. Bước sóng nhiễu xạ được xác định theo công thức Littrow [70]:

$$2dsin\alpha = m\lambda. \tag{3.1}$$

trong đó, α là góc quay của cách tử so với trục quang học của BCH, d là hằng số cách tử, m là bậc nhiễu xạ và λ là bước sóng nhiễu xạ.



Hình 3.9. Sơ đồ hệ laser Ce:LiCAF sử dụng cấu hình BCH Littrow [70].
3.2.2.2. Đặc trưng phát xạ của hệ laser Ce:LiCAF sử dụng cấu hình buồng cộng hưởng Littrow

Dựa trên sơ đồ thí nghiệm đã trình bày ở Hình 3.9, hệ laser UV Ce:LiCAF sử dụng cấu hình BCH Littrow phát các xung laser băng hẹp, điều chỉnh bước sóng đã được phát triển và chỉ ra trên Hình 3.10. BCH laser có chiều dài 6,5 cm được cấu tạo gồm cách tử nhiễu xạ (2400 vạch/mm) và gương ra có hệ số phản xạ 30% trong vùng bước sóng từ 280 nm đến 320 nm. Cách tử có kích thước 20x20x6 mm được đặt trên giá vi chỉnh góc có độ chính xác tới 0,01°.



Hình 3.10. Hệ laser Ce:LiCAF sử dụng cấu hình BCH Littrow.

Tại bước sóng 288,5 nm tiết diện phát xạ cũng như công suất laser lối ra của tinh thể Ce:LiCAF là lớn nhất. Để phát được các bức xạ tại bước sóng 288,5 nm này thì góc quay của cách tử so với trục quang học của BCH được xác định theo công thức (3.1) là 20,3°. Khi đó, sự phụ thuộc của công suất laser lối ra vào công suất laser bom đã được khảo sát và chỉ ra trên Hình 3.11.



Hình 3.11. Sự phụ thuộc của công suất laser lối ra vào công suất laser bơm (cấu hình BCH Littrow).

Kết quả chỉ ra rằng, ngưỡng phát của hệ laser UV Ce:LiCAF sử dụng cấu hình BCH Littrow là 40 mW. Hiệu suất laser đạt được là 8,5% với công suất laser lối ra lớn nhất thu được là 8 mW tại công suất bơm là 120 mW. Khi so sánh với cấu hình BCH Fabry-Perot, ngưỡng phát laser của cấu hình BCH Littrow cao hơn và hiệu suất laser là thấp hơn. Nguyên nhân do sự chọn lọc bước sóng của cách tử nhiễu xạ, chỉ một số photon được cách tử chọn theo công thức (3.1) sẽ quay trở lại môi trường hoạt chất nên chùm laser trong BCH Littrow có mất mát lớn hơn so với BCH Fabry-Perot.

Để khảo sát các đặc trưng phổ và xung laser lối ra của hệ laser Ce:LiCAF sử dụng cấu hình BCH Littrow, công suất laser bơm được giữ không đổi là 120 mW cao hơn ngưỡng phát laser khoảng 3 lần. Tại công suất bơm này, độ rộng xung là 3,6 ns (Hình 3.12.a) và độ rộng phổ là 0,6 nm (Hình 3.12.b).



Hình 3.12. (a) Độ rộng xung và (b) độ rộng phổ laser lối ra (cấu hình BCH Littrow).

Để khảo sát khả năng điều chỉnh bước sóng của hệ laser Ce:LiCAF sử dụng cấu hình BCH Littrow thì công suất laser bom cần phải đủ lớn để khuếch đại được các bức xạ ở hai bên sườn phổ. Do vậy, công suất laser bom cho hệ được giữ không đổi là 120 mW, đồng thời thay đổi góc giữa cách tử và trục quang học của BCH từ 19° đến 23°. Kết quả cho thấy, hệ laser Ce:LiCAF sử dụng cấu hình BCH Littrow có khả năng điều chỉnh liên tục bước sóng trên một dải phổ rộng 11 nm, từ 285 nm đến 296 nm. Các bước sóng nằm trong vùng điều chỉnh của hệ laser UV Ce:LiCAF sử dụng cấu hình BCH Littrow được chỉ ra trên Hình 3.13.



Hình 3.13. Các bức xạ nằm trong dải điều chỉnh bước sóng của laser Ce:LiCAF cấu hình BCH Littrow. (a) bước sóng ngắn nhất trong dải điều chỉnh 285 nm, (b) bước sóng tại đỉnh phát xạ 288,5 nm (c) bước sóng 292 nm và (d) bước sóng dài nhất trong dải điều chỉnh 296 nm.

3.2.3. Laser tín hiệu băng hẹp sử dụng cấu hình buồng cộng hưởng Littman 3.2.3.1. Cấu hình BCH Littman

Một số ứng dụng có thể đòi hỏi các nguồn bức xạ laser UV có độ đơn sắc cao hơn so với các bức xạ thu được từ BCH Littrow như ứng dụng về giao thoa, quang phổ.... Khi đó, hệ laser UV Ce:LiCAF phát xung tín hiệu băng hẹp điều chỉnh bước

65

sóng sử dụng cấu hình BCH Littman sẽ được thay thế cho hệ laser phát xung tín hiệu sử dụng cấu hình BCH Littrow. Sơ đồ hệ laser UV Ce:LiCAF sử dụng cấu hình BCH Littman được chỉ ra trên Hình 3.14 [71].



Hình 3.14. Sơ đồ hệ laser Ce:LiCAF sử dụng cấu hình BCH Littman.

Buồng cộng hưởng Littman được tạo bởi gương cuối R_1 , gương ra R_2 và cách tử nhiễu xạ G. Trong một chu trình đi lại trong BCH, chùm laser bị nhiễu xạ hai lần trên bề mặt cách tử. Lần thứ nhất: Chùm laser ra khỏi tinh thể, sau khi nhiễu xạ trên bề mặt cách tử chùm laser đến gương R_1 . Lần thứ hai: Sau khi phản xạ trên gương R_1 chùm laser quay trở lại bề mặt cách tử. Đối với cấu hình BCH Littman, độ rộng phổ laser lối ra sẽ phụ thuộc vào chiều dài hiệu dụng của cách tử (độ rộng vết laser trên bề mặt cách tử. Do đó, cách tử sẽ được quay góc sao cho chùm laser tới phủ kín trên bề mặt cách tử. Việc chọn lọc bước sóng được thực hiện bằng cách quay gương cuối R_1 và bước sóng laser lối ra được xác định theo công thức Littman [70, 71]:

$$\lambda_i = (d/m)/(\sin\theta + \sin\phi). \tag{3.2}$$

trong đó, θ là góc giữa chùm laser và pháp tuyến của cách tử; ϕ là góc tạo bởi pháp tuyến của cách tử và pháp tuyến của gương phản xạ R_1 , d là hằng số cách tử, m là bậc nhiễu xạ.

3.2.3.2. Đặc trưng phát xạ của hệ laser Ce:LiCAF sử dụng cấu hình buồng cộng hưởng Littman

Dựa trên sơ đồ hệ laser Ce:LiCAF sử dụng cấu hình BCH Littman đã được trình bày trên Hình 3.14, hệ laser Ce:LiCAF sử dụng cấu hình BCH Littman phát các xung laser UV băng hẹp đã được phát triển và chỉ ra trên Hình 3.15. BCH Littman có chiều dài 11 cm được cấu tạo bởi một gương ra có hệ số phản xạ 90%, gương cuối có hệ số phản xạ 96 % trong vùng bước sóng laser và cách tử nhiễu xạ (2400 vạch/mm). Để vết laser trên bề mặt cách tử là lớn nhất, cách tử được quay góc $\theta = 65^{\circ}$ so với trục quang học của BCH. Gương cuối của BCH được đặt trên giá vi chỉnh góc với góc quay là 17,6° so với pháp tuyến cách tử khi đó bức xạ laser lối ra có bước sóng được xác định theo công thức (3.2) là 288,5 nm.



Hình 3.15. Hệ laser Ce:LiCAF sử dụng cấu hình BCH Littman.

Sự phụ thuộc của công suất laser lối ra theo công suất laser bơm đã được khảo sát. Kết quả cho thấy, ngưỡng phát của hệ laser ở công suất bơm là 120 mW. Ở công suất laser bơm 160 mW (khoảng 1,3 lần trên ngưỡng), công suất laser lối ra thu được là 1,5 mW tương ứng với hiệu suất laser khoảng 1%. Các đặc trưng phổ và thời gian của xung laser lối ra tại công suất laser bơm 160 mW cũng đã được khảo sát. Kết quả cho thấy, độ rộng xung laser lối ra là 3,9 ns (Hình 3.16.a) và độ rộng phổ là 0,6 nm (Hình 3.16.b).



Hình 3.16.(a) Độ rộng xung và (b) độ rộng phổ laser lối ra (cấu hình BCH Littman).

Để khảo sát khả năng điều chỉnh bước sóng của hệ laser UV Ce:LiCAF phát băng hẹp sử dụng cấu hình BCH Littman, công suất laser bơm được giữ không đổi ở mức 160 mW. Góc giữa gương cuối BCH và pháp tuyến của cách tử thay đổi từ 12,5° đến 19,5°. Kết quả cho thấy, hệ laser Ce:LiCAF sử dụng cấu hình BCH Littman có dải điều chỉnh bước sóng là 4,5 nm từ 286 nm đến 290,5 nm. Hình 3.17 chỉ ra các bước sóng nằm trong vùng điều chỉnh bước sóng của hệ laser Ce:LiCAF sử dụng cấu hình BCH Littman. Hình 3.17.a là bước sóng ngắn nhất trong dải điều chỉnh, 286 nm; Hình 3.17.b là bước sóng đỉnh phát xạ, 288,5 nm; Hình 3.17.c là bước sóng nằm trong dải điều chỉnh, 289 nm và Hình 3.17.d là bước sóng dài nhất trong dải điều chỉnh, 290,5 nm.

Khi so sánh với hệ laser Ce:LiCAF sử dụng cấu hình BCH Littrow, hệ laser Ce:LiCAF sử dụng cấu hình BCH Littman có ngưỡng phát laser cao hơn và hiệu suất laser thấp hơn. Nguyên nhân do trong một chu trình đi lại trong BCH Littman chùm laser bị nhiễu xạ hai lần trên mặt cách tử dẫn tới mất mát trong BCH lớn hơn. Bên cạnh đó, vùng điều chỉnh bước sóng của hệ laser Ce:LiCAF sử dụng cấu hình BCH Littman cũng nhỏ hơn so với cấu hình BCH Littrow. Nguyên nhân do công suất laser bơm cho cấu hình BCH Littman thấp chỉ bằng 1,3 lần trên ngưỡng phát dẫn tới không khuếch đại được các bức xạ hai bên sườn phổ. Để đạt được vùng điều chỉnh rộng hơn, công suất bơm cho hệ laser UV Ce:LiCAF sử dụng cấu hình BCH Littman cần phải lớn hơn. Tuy nhiên, công suất laser bơm không thể tăng quá cao do các hiệu ứng nhiệt có thể dẫn tới phá hủy tinh thể.



Hình 3.17. Các bức xạ nằm trong dải điều chỉnh của laser Ce:LiCAF cấu hình BCH Littman. (a) bước sóng ngắn nhất trong dải điều chỉnh 286 nm, (b) bước sóng đỉnh phát xạ 288,5 nm,(c) bước sóng nằm trong dải điều chỉnh 289 nm, (d) bước sóng dài nhất trong dải điều chỉnh 290,5 nm.

3.2.3.3. Phát đồng thời hai bức xạ laser tử ngoại băng hẹp điều chỉnh bước sóng sử dụng tinh thể Ce:LiCAF

Một số ứng dụng như giao thoa kế, hệ terahertz và hệ Lidar hấp thụ vi sai,... [72-76] yêu cầu các hệ laser có khả năng phát đồng thời hai bức xạ laser băng hẹp điều chỉnh bước sóng. Tuy nhiên, việc phát đồng thời hai bức xạ laser UV chủ yếu thu được bằng việc nhân tần số từ hai bức xạ có bước sóng dài hơn, do đó kích thước hệ khá lớn. Hơn nữa, các nghiên cứu phát đồng thời hai bức xạ trước đây cũng mới chỉ tập trung vào vùng bước sóng hồng ngoại và nhìn thấy. Do vậy, một hệ laser Ce:LiCAF sử dụng cấu hình hai BCH Littman phát đồng thời hai xung laser băng hẹp đã được đề xuất, sơ đồ hệ laser được chỉ ra trên Hình 3.18.



Hình 3.18. Sơ đồ hệ laser tử ngoại Ce:LiCAF phát đồng thời hai bức xạ băng hẹp.

Trong cấu hình này, chùm laser sau khi bị nhiễu xạ trên mặt cách tử, một phần sẽ đến gương R_1 phần còn lại đến gương R_3 . Như vậy, hệ laser sẽ có hai BCH Littman hoạt động đồng thời, dùng chung cách tử và môi trường hoạt chất. BCH thứ nhất được thiết lập bởi gương R_1 , cách tử G và gương ra R_2 ; BCH còn lại được thiết lập bởi gương R_3 , cách tử G và gương R_2 . Việc chọn lọc bước sóng trong mỗi BCH được thực hiện độc lập bằng cách quay gương R_1 và gương R_3 .

Trước khi phát triển thực nghiệm, việc nghiên cứu đánh giá khả năng phát xạ cũng như tối ưu các thiết bị, linh kiện sử dụng trong hệ là cần thiết. Bằng việc giải hệ phương trình tốc độ viết cấu hình hai BCH Littman với các thông số được lấy từ các linh kiện hiện có tại phòng thí nghiệm Quang tử - Viện Vật lý, việc phát đồng thời hai bức xạ laser UV, băng hẹp đã được chứng minh và chỉ ra trên Hình 3.19. Kết quả cho thấy, hai bức xạ laser UV băng hẹp được ghi nhận đồng thời tại các bước sóng 290,0 nm và 289,7 nm với độ rộng phổ phát xạ của laser lối ra là 0,002 nm. Các kết quả này là có ý nghĩa làm cơ sở cho việc phát triển hệ thực nghiệm.



Hình 3.19. (a). Tiến trình phổ 3D và hai bức xạ UV băng hẹp tại bước sóng (b) 289,7 nm và (c) 290,0 nm thu nhận đồng thời.

3.2.4. Khuếch đại xung laser tử ngoại băng hẹp sử dụng tinh thể Ce:LiCAF

Dựa trên sơ đồ hệ đã được trình bày trên Hình 3.8, hệ khuếch đại xung laser UV băng hẹp sử dụng tinh thể Ce:LiCAF đã được phát triển và chỉ ra trên Hình 3.20. Các bức xạ thu được từ hệ laser UV Ce:LiCAF sử dụng cấu hình BCH Littrow đã được trình bày trong Mục 3.2.3 được dẫn tới bộ khuếch đại bốn lần truyền qua. Chùm laser tín hiệu trước khi đưa vào khuếch đại có các thông số gồm đỉnh phổ tại bước sóng 288,5 nm, độ rộng phổ là 0,6 nm và độ rộng xung 3,6 ns. Sau khi chuẩn trực, chùm laser có đường kính là 1 mm và công suất chùm là 7 mW. Công suất laser bom cho hệ khuếch đại là 190 mW ở bước sóng 266 nm. Các đặc trưng quang học của xung laser tín hiệu và xung laser sau bốn lần khuếch đại được khảo sát và trình bày trên Bảng 3.3.



Hình 3.20. Hệ phát và khuếch đại các xung laser tử ngoại băng hẹp bốn lần truyền qua sử dụng tinh thể Ce:LiCAF.

Bảng 3.3. Thông số xung laser tín hiệu và xung laser sau khuếch đại (Hệ khuếch đại các xung laser UV băng hẹp).

Thông số	Xung laser tín hiệu	Xung laser sau khuếch đại
Công suất (mW)	7	49
Bước sóng (nm)	288,5	288,5
FWHM (nm)	0,6	0,6
Độ rộng xung (ns)	3,6	3,6

Độ rộng xung laser sau bốn lần khuếch đại là 3,1 ns không thay đổi so với xung laser tín hiệu đầu vào và được chỉ ra trên Hình 3.21.(a). Phổ của laser sau bốn lần khuếch đại được chỉ ra trên Hình 3.21.(b), laser sau khuếch đại có độ rộng phổ 0,6 nm và đỉnh phổ tại bước sóng 288,5 nm. Như vậy, phổ laser sau khuếch đại không thay đổi so với phổ laser tín hiệu, các kết này là phù hợp với các kết quả nghiên cứu động học phổ bằng phương trình Frantz-Nodvik mở rộng đã được thực hiện trong Mục 2.4.5, chương 2.



Hình 3.21.(a) Độ rộng xung và (b) độ rộng phổ laser sau khuếch đại

Với công suất laser tín hiệu là 7 mW, công suất laser đạt được sau bốn lần khuếch đại là 49 mW tương ứng với hệ số khuếch đại là 7,0. Các kết quả thực nghiệm về công suất đạt được (đường nét liền màu đen) và hệ số khuếch đại (đường nét đứt màu đen) trong mỗi lần truyền qua được chỉ ra trên Hình 3.22.



Hình 3.22. Kết quả mô phỏng và thực nghiệm khuếch đại các xung laser băng hẹp.

Bằng việc giải phương trình Frantz-Nodvik mở rộng đã được trình bày trong chương 2 với với các điều kiện mô phỏng được lấy từ hệ thực nghiệm, công suất (đường nét liền màu đỏ) và hệ số khuếch đại (đường nét đứt màu đỏ) sau mỗi lần truyền qua cũng đã được xác định bằng mô phỏng và chỉ ra trên Hình 3.18. Kết quả cho thấy có sự phù hợp tốt giữa mô phỏng và thực nghiệm trong ba lần khuếch đại đầu tiên. Trong lần khuếch đại thứ tư, công suất laser sau khuếch đại theo thực nghiệm nhỏ hơn ~ 15% so với kết quả mô phỏng, nguyên nhân có thể do hiệu chỉnh sự chồng chập giữa chùm laser bơm và chùm tín hiệu chưa được tốt trong lần khuếch đại thứ tư này.

KÊT LUÂN CHƯƠNG 3

Chương 3 trình bày các kết quả thực nghiệm phát triển hệ khuếch đại xung laser UV sử dụng tinh thể Ce:LiCAF tại phòng thí nghiệm của Trung tâm Điện tử học Lượng tử, Viện Vật lý, bao gồm:

- Phát triển hệ khuếch đại các xung laser UV băng rộng bốn lần truyền qua sử dụng tinh thể Ce:LiCAF. Hệ khuếch đại được bơm bằng họa ba bậc bốn của laser Nd:YAG tại bước sóng 266 nm, công suất bơm là 160 mW. Với xung laser tín hiệu có đỉnh phổ tại bước sóng 288,5 nm và độ rộng phổ 2 nm, laser sau khuếch đại có đặc trựng về phổ không thay đổi so với xung laser tín hiệu, các kết quả này là phù hợp với các nghiên cứu về động học phổ đã được thực hiện trong chương 2. Xung laser sau bốn lần khuếch đại có công suất đạt được là 54 mW tương ứng với hệ số khuếch đại 7,7 lần, kết quả thực nghiệm này cho thấy sự phù hợp tốt (sai số khoảng 5 %) với kết quả mô phỏng bằng phương trình Frantz-Nodvik mở rộng.
- Hệ khuếch đại các xung laser UV băng hẹp bốn lần truyền qua sử dụng tinh thể Ce:LiCAF cũng đã được phát triển. Xung laser tín hiệu băng hẹp có công suất 7 mW, độ rộng phổ 0,6 nm tại bước sóng 288,5 nm sau bốn lần khuếch đại các đặc trưng về phổ của laser sau khuếch đại không thay đổi so với laser tín hiệu. Trong khi đó, công suất laser sau khuếch đại là 49 mW tương ứng với hệ số khuếch đại 7. Khi so sánh kết quả thực nghiệm và mô phỏng bằng phương trình Frantz-Nodvik mở rộng cho thấy sự phù hợp cao trong 3 lần khuếch đại đầu tiên. Tuy nhiên trong lần khuếch đại thứ tư, có sự sai lệch giữa kết quả thực nghiệm và mô phỏng, nguyên nhân do việc hiệu chỉnh sự chồng chập giữa chùm laser tín hiệu và laser bơm chưa được tốt.

Khi so sánh các kết quả đạt được của hệ khuếch đại các xung laser UV đã phát triển với nguồn laser UV cho các hệ Lidar trên thế giới và tại Việt nam [12, 32, 33], hệ khuếch đại các xung laser UV Ce:LiCAF với công suất trung bình khoảng 50 mW cho cả trường hợp băng rộng và băng hẹp là đáp ứng đủ các điều kiện cho hệ Lidar nghiên cứu khí quyển cũng như các ứng dụng nghiên cứu môi trường khác. Do đó, một số ứng dụng ban đầu của nguồn laser UV Ce:LiCAF trong nghiên cứu môi trường sẽ được thực hiện trong phần tiếp theo.

CHƯƠNG 4

ỨNG DỤNG LASER TỬ NGOẠI Ce:LiCAF TRONG QUAN TRẮC MÔI TRƯỜNG

Nội dung Chương 4 trình bày ứng dụng của nguồn laser UV Ce:LiCAF đã được phát triển trong Chương 3 cho các nghiên cứu quan trắc môi trường. Một hệ quang phổ hấp thụ vi sai ứng laser UV Ce:LiCAF bước đầu đã được phát triển trong phòng thí nghiệm cho việc xác định mật độ khí SO₂. Hơn nữa, cường độ tán xạ theo góc của một số hạt sol khí phổ biến là carbon đen, carbon nâu và nước ô nhiễm cũng đã được nghiên cứu bằng lý thuyết tán xạ Mie. Các ảnh hưởng của kích thước hạt, bước sóng kích thích lên cường độ tán xạ cũng đã được chỉ ra [69].

4.1. Phát triển hệ quang phổ hấp thụ vi sai xác định mật độ khí SO₂

Quang phổ hấp thụ vi sai (DOAS-Differential Optical Absorption Spectroscopy) là kỹ thuật xác định nồng độ của các chất khí trong khí quyển bằng cách đo hấp thụ băng hẹp của các chất khí trong vùng quang phổ UV và khả kiến [77-79]. Các hệ DOAS đã chứng minh được công cụ hiệu quả xác định nhiều loại chất khí trong khí quyển như O₃, SO₂, NO, NO₂...[80-83]. Một hệ DOAS cơ bản bao gồm một nguồn phát bức xạ băng rộng và các thiết bị quang học được thiết lập để phát và thu nhận bức xạ sau khi đi qua khí quyển. Việc lựa chọn nguồn bức xạ kích thích cho các hệ DOAS phụ thuộc vào đối tượng cần nghiên cứu, mặt trời hoặc ánh sáng tán xạ từ mặt trời hoặc các đèn Xe-non là nguồn sáng băng rộng phổ biến cho các hệ DOAS. Tuy nhiên, các nguồn sáng cũng có nhược điểm như phổ của mặt trời có công suất thấp, trong khi đó đèn Xe-non có độ phân kỳ cao dẫn tới quãng đường đi của ánh sáng trong khí quyển bị hạn chế. Do vậy, việc phát ứng dụng các nguồn laser UV công suất cao băng rộng vào các hệ DOAS là cần thiết [10].

4.1.1. Hệ quang phổ hấp thụ vi sai ứng dụng laser tử ngoại Ce:LiCAF

Khí quyển là hỗ hợp gồm nhiều chất khí, trong đó nhiều chất khí ô nhiễm như SO₂, NO, NO₂ ... có phổ hấp thụ nằm trong vùng bước sóng từ 280 nm đến 300 nm [10, 83-87]. Do đó, việc ứng dụng nguồn laser UV Ce:LiCAF băng rộng, công suất cao vào hệ DOAS là cần thiết, giúp mở ra các nghiên cứu xác định nồng độ khí này trong khí quyển. Trước khi phát triển hệ và thực hiện các phép đo trong khí quyển thì

việc nghiên cứu đánh giá khả năng hoạt động của hệ trong điều kiện phòng thí nghiệm là cần thiết. Do vậy, một hệ DOAS ứng dụng laser UV Ce:LiCAF đã được xây dựng trong phòng thí nghiệm cho việc xác định nồng độ chất khí chuẩn SO₂, sơ đồ hệ thí nghiệm được chỉ ra trên Hình 4.1. Cấu tạo của hệ có thể được chia thành ba bộ phận gồm: Hệ laser; Bình chứa khí; Hệ thu tín hiệu và xử lý số liệu.



Hình 4.1. Sơ đồ hệ thí nghiệm khảo sát nồng độ khí SO₂ bằng kĩ thuật quang phổ hấp thụ vi sai.

Hệ laser: Hệ khuếch đại các xung laser UV băng rộng Ce:LiCAF đã phát triển trong Chương 3 được sử dụng làm nguồn bức xạ kích thích cho hệ DOAS. Để tăng độ hấp thụ, chùm bức xạ laser được dẫn qua bình khí hai lần thông qua các gương dẫn R_1 , R_1 , R_3 có hệ số phản xạ cao trong vùng bước sóng UV.

Bình chứa khí: Bình có chiều dài 0,5 nm với hai cửa sổ được làm bằng thạch anh cho phép các bức xạ nằm trong vùng UV truyền qua. Bốn van từ S₁ đến S₄ có nhiệm vụ bơm và xả khí liên tục trong bình.

Hệ thu tín hiệu và xử lý số liệu: Tín hiệu laser thông qua cáp quang sẽ được dẫn tới máy quang phổ. Máy quang phổ sẽ ghi nhận các đặc trưng phổ của chùm bức xạ laser Ce:LiCAF trong hai trường hợp, khi bình chứa khí và khi bình không chứa khí. Dữ liệu về phổ sau đó sẽ được xử lý bằng phần mềm Q-DOAS và cho kết quả về mật độ khí chứa trong bình.

4.1.2. Đo mật độ khí SO₂ bằng hệ quang phổ hấp thụ vi sai

Dựa trên sơ đồ hệ thí nghiệm đã được thiết kế, hệ DOAS khảo sát nồng độ khí đã được phát triển trong điều kiện phòng thí nghiệm (Hình 4.2). Nguồn bức xạ kích thích cho hệ là laser Ce:LiCAF có công suất 10 mW, độ rộng phổ 2 nm với bước sóng nằm trong khoảng từ 286 nm đến 291 nm và đỉnh phổ phát xạ tại bước sóng 288,5 nm. Ba gương dẫn chùm laser là gương mạ nhôm có hệ số phản xạ trên 90% trong vùng bước sóng từ 280 - 320 nm. Các đặc trưng về phổ của laser sau khi đi qua bình khí sẽ được thu nhận bằng máy quang phổ Avantes có độ phân giải 0,6 nm. Để đảm bảo nồng độ khí SO₂ trong bình luôn duy trì ở mức 100 ppm, dòng khí được bơm vào bình với công suất lên tới 3 lít/phút.



Hình 4.2. Hệ thí nghiệm khảo sát nồng độ khí SO2
 bằng kĩ thuật quang phổ hấp thụ vi sai.

Các đặc trưng phổ của laser Ce:LiCAF sau khi đi qua bình trong trường hợp bình không chứa khí SO₂ và có chứa khí SO₂ đã được ghi nhận và chỉ ra trên Hình 4.3. Sau khi dữ liệu phổ được xử lý bằng phần mềm Q-DOAS, kết quả cho thấy nồng độ khí SO₂ đo được là 100 ppm với sai số phép đo là nhỏ cỡ 6%. Như vậy, việc ứng dụng laser tử ngoại Ce:LiCAF vào kĩ thuật DOAS cho phép xác định được chính xác nồng độ khí SO₂ với sai số thấp. Các kết quả đạt được là cơ sở cho việc nghiên cứu xác định nồng độ các chất khí có phổ hấp thụ nằm trong vùng bước sóng UV. Cần chú ý rằng, hệ DOAS nghiên cứu nồng độ chất khí được thực hiện trong điều kiện phòng thí nghiệm với quãng đường chùm laser đi trong chất khí ngắn chỉ 1 m. Do đó, công suất chùm laser kích thích khoảng 10 mW là đủ. Tuy nhiên, để thực hiện được các phép đo trên phạm vi rộng thì việc sử dụng chùm bức xạ laser Ce:LiCAF có công suất lớn là cần thiết.



Hình 4.3. Phổ laser thu được trong hai trường hợp khi bình chứa khí

và không chứa khí SO₂.

4.2. Nghiên cứu đặc trưng tán xạ của một số hạt sol khí bằng laser tử ngoại điều chỉnh bước sóng Ce:LiCAF

Các hạt sol khí trong khí quyển là nguyên nhân chính dẫn tới biến đổi khí hậu theo hướng tiêu cực, gây ảnh hưởng đến sức khỏe động thực vật. Trong đó, nước ô nhiễm có nguồn gốc từ quá trình bay hơi của sông, hồ,... carbon đen có nguồn gốc từ quá trình bay hơi của sông, hồ,... carbon đen có nguồn gốc từ quá trình đốt cháy các (động cơ diesel, khu công nghiệp,...), carbon nâu có nguồn gốc từ quá trình đốt cháy chất hữu cơ (cháy rừng, đốt rác thải,...), đóng góp lớn vào thành phần hạt sol khí PM 2.5. Do đó, việc nhận biết, phân loại các hoạt sol khí này là cần thiết nhằm đưa ra các biện pháp phù hợp giúp giảm lượng phát thải, cải thiện chất lượng bầu khí quyển [8-10].

Việc xác định thành phần kích thước hạt có thể sử dụng tán xạ Mie, phương pháp này dựa trên mối tương quan giữa phân bố cường độ tán xạ và kích thước hạt [88-90]. Nói một cách đơn giản, các hạt lớn thì tán xạ ánh sáng thành các góc nhỏ trong khi các hạt nhỏ tạo ra các kiểu tán xạ góc lớn hơn. Hơn nữa, các hạt khác nhau có đặc trưng tán xạ khác nhau, do đó có thể dựa trên các đặc trưng tán xạ để xác định loại hạt. Theo lý thuyết tán xạ Mie, tán xạ ngược và tán xạ theo góc của các hạt lần lượt được xác định theo công thức [91]:

$$Q_{sca} = \frac{2}{x^2} \sum_{n=1}^{\infty} (2n+1) (|a_n|^2 + |b_n|^2) .$$
(4.1)

$$Q_b = \frac{1}{x^2} \left| \sum_{n=1}^{\infty} (2n+1)(-1)^n (a_n - b_n) \right|^2.$$
(4.2)

trong đó, Q_{sca} là hàm tán xạ theo góc, Q_b là hàm tán xạ ngược; a_n , b_n là các hệ số tán xạ Mie, n = (1, 2, 3 ...) là các bậc của hàm Bessel, $x = 2\pi a/\lambda$ là hệ số kích thước hạt với a là bán kính của hạt sol khí và λ là bước sóng laser kích thích. Tán xạ Mie sẽ được áp dụng cho các hạt dạng cầu, có kích thước lớn cỡ bước sóng trở lên với hệ số kích thước hạt nằm trong khoảng từ 0,2 đến 2000 [91].

4.2.1. Thông số sử dụng trong mô phỏng

Để đánh giá đặc trưng tán xạ của các hạt sol khí cũng như xem xét ưu điểm của việc sử dụng laser bước sóng ngắn nghiên cứu tán xạ hạt, hai bức xạ laser tại bước sóng 532 nm và 288,5 nm được sử dụng. Bước sóng 532 nm là họa ba bậc hai của các laser Neodymium thương mại như Nd:YAG hoặc Nd:YVO4, trong khi đó bước sóng laser 288,5 nm thu được từ hệ laser UV Ce:LiCAF phát bức xạ băng hẹp đã được phát triển trong chương 3. Đối tượng nghiên cứu các đặc trưng tán xạ là các hạt sol khí ô nhiễm phổ biến trong khí quyển bao gồm nước ô nhiễm, carbon đen và carbon nâu. Trên Bảng 4.1 là chiết suất phức của nước ô nhiễm, carbon nâu và carbon đen đối với hai bức xạ laser kích thích 532 nm và 288,5 nm [92].

Bảng 4.1. Chiết suất phức của nước ô nhiễm, carbon nâu và carbon đen đối với hai bức xạ laser kích thích 532 nm và 288,5 nm [92].

Đối tượng nghiên cứu	Chiết suất tại các bước sóng laser	
	532 nm	288,5 nm
Nước lẫn tạp chất	1,54 + i0,015	1,54 + i0,015
Carbon đen	1,77 + i0,631	1,70 + i0,641
Carbon nâu	1,52 + i0,182	1,57 + i0,031

Đơn hạt carbon thường có kích thước vài chục nano mét, tuy nhiên trong khí quyển các hạt này thường không tồn tại độc lập mà kết dính với nhau tạo thành đám với kích thước từ 0,1 μm đến ~ 2,5 μm. Trong khi đó, các hạt nước trong khí quyển

có dạng cầu với khoảng biến thiên đường kính lớn, các hạt nhỏ nhất có kích thước \sim 0,01 μ m, trong khi các hạt lớn có kích thước cỡ vài chục μ m. Tuy nhiên, phân bố chủ yếu của các hạt nước vẫn nằm trong khoảng PM 2.5 μ m. Do vậy, nghiên cứu sẽ được thực hiện trên các hạt sol khí có kích thước lần lượt là 0,1 μ m, 0,4 μ m và 1,2 μ m.

Trên bảng Bảng 4.2 là kích thước hạt và hệ số kích thước hạt được tính toán theo bước sóng 532 nm và 288,5 nm. Hệ số kích thước hạt nằm trong khoảng 1,18 đến 17,72 khi kích thích bằng bước sóng 532 nm và nằm trong khoảng 2,18 đến 32,67 khi kích thích bằng bước sóng 288,5 nm, các giá trị của hệ số kích thước hạt này là phù hợp với lý thuyết tán xạ Mie.

λ (nm)	532 nm	288,5 nm
a (µm)		
0,1	1,2	2,2
0,4	4,7	8,7
1,2	14,2	26,1

Bảng 4.2. Hệ số kích thước hạt được xác định theo bước sóng.

4.2.2. Ảnh hưởng của kích thước hạt lên đặc trưng tán xạ theo góc

Để đánh giá ảnh hưởng của bước sóng kích thích đến tán xạ góc của các hạt, hai bức xạ laser đơn sắc tại các bước sóng 532 nm và 288,5 nm lần lượt kích thích vào hỗn hợp các hạt sol khí carbon đen, carbon nâu và nước ô nhiễm. Hình 4.4 là kết quả mô phỏng tán xạ theo góc của các hạt sol khí trong trường hợp bán kính hạt có độ lớn là 0,1 µm; 0,4 µm hoặc 1,2 µm được chỉ ra trên, kết quả cho thấy:

- *Hạt có bán kính 0,1 µm*: Khi kích thích hạt bằng bước sóng 532 hoặc 288,5 nm; cường độ tán xạ theo phương thuận (góc 0^0) lớn hơn so với cường độ tán xạ ngược (góc 180^0). Tuy nhiên, cường độ tán xạ góc của ba loại hạt này không có nhiều sự khác biệt dẫn tới không thể nhận biết được các hạt này bằng tán xạ góc. Điều này được giải thích do bán kính hạt nhỏ hơn bước sóng kích thích dẫn tán xạ góc thể hiện không rõ rệt.

- Hạt có bán kính 0,4 μm: Cường độ tán xạ của mỗi hạt đã thể hiện rõ sự thay đổi theo góc khi kích thích bằng bước sóng 532 nm. Tuy nhiên, việc phân biệt ba loại hạt nước ô nhiễm, carbon đen và carbon nâu khó đạt được do cường độ tán xạ theo góc của ba loại hạt này khá tương đồng. Trong khi đó, cường độ tán xạ theo góc của 3 loại hạt này thể hiện sự khác biệt lớn khi được kích thích bằng bước sóng 288,5 nm. Ví dụ: tại góc tán xạ ngược, cường độ tán xạ của hạt carbon đen rất nhỏ gần như bằng không, trong khi nước ô nhiễm có cường độ tán xạ mạnh nhất lớn hơn cỡ một bậc so với hạt carbon nâu. Điều này được giải thích do bước sóng kích thích ngắn hơn dẫn các hạt khi kích thích bằng bước sóng 288,5 nm sẽ có cường độ tán xạ lớn hơn so với bước sóng 532 nm. Hơn nữa, các đặc trưng tán xạ theo góc thể hiện cũng rõ ràng hơn. Do vậy khi kích thích vào một hỗn hợp các hạt có kích thước 0,4 µm bằng laser UV 288,5 nm, ta hoàn toàn có thể nhận biết được các loại hạt trong hỗn hợp.

- Hạt có bán kính 1,2 μm: Cường độ tán tán xạ thay đối nhanh theo góc khi được kích thích bằng bước sóng 532 nm hoặc 288,5 nm. Do đó, việc phân biệt các loại hạt này có thể thực hiện được. Tuy nhiên, để xác định được đặc trưng tán xạ theo góc của các hạt đòi hỏi phải sử dụng nhiều cảm biến đặt trên mặt phẳng tán xạ.



Hình 4.4. Cường độ tán xạ theo góc của các hạt carbon đen, carbon nâu và nước ô nhiễm với kích thước khác nhau.

4.2.3. Ảnh hưởng của bước sóng kích thích đến tán xạ ngược

Môi trường laser UV Ce:LiCAF được chứng minh là có khả năng điều chỉnh bước sóng trên một dải phổ rộng từ 280 nm đến 320 nm. Do đó, việc nghiên cứu ảnh hưởng của bước sóng laser kích thích lên cường độ tán xạ ngược của các hạt sol khí gồm nước ô nhiễm, carbon đen và carbon nâu đã được khảo sát. Do khoảng biến thiên bước sóng là nhỏ dẫn tới có thế xem chiết suất của các hạt sol khí này với vùng bước sóng tới là không đổi. Khảo sát được thực hiện với các hạt có cùng kích thước 0,4 µm. Kết quả nghiên cứu ảnh hưởng của bước sóng laser kích thích lên cường độ tán xạ ngược của các hạt sol khí được chỉ ra trên Hình 4.5.

Kết quả chỉ ra rằng với cùng dải bước sóng kích thích và kích thước hạt không đổi, cường độ tán xạ ngược của nước ô nhiễm là lớn nhất gấp ~2 lần so với tán xạ thu được từ carbon nâu. Trong khi đó, cường độ tán xạ của carbon đen gần như không đáng kể. Điều này có thể được giải thích do bản chất của mỗi hạt sol khí. Hạt carbon đen có chiết suất phức cao hơn nhiều so với carbon nâu và nước ô nhiễm. Do đó, phần lớn bức xạ laser kích thích tới sẽ bị hấp thụ, chỉ một phần bị tán xạ. Hơn nữa, kết quả nghiên cứu còn chỉ ra bước sóng phù hợp nhất trong dải điều chỉnh để khảo sát tán xạ ngược của các hạt sol khí này là từ 280 đến 290 nm hoặc từ 305 đến 320 nm.



Hình 4.5. Sự phụ thuộc của cường độ tán xạ ngược của hạt carbon đen, carbon nâu và nước ô nhiễm có kích thước 0,4 μm vào bước sóng laser kích thích lên.

Như vậy, việc nghiên cứu đánh giá các đặc trưng tán xạ của các hạt sol khí PM 2.5 bằng laser UV băng hẹp Ce:LiCAF đã được phát triển sẽ cho hiệu quả hơn so với các bức xạ vùng nhìn thấy và hồng ngoại. Các kết quả nghiên cứu mô phỏng đạt được mới chỉ là bước đầu, việc nghiên cứu có thể mở rộng cho ứng dụng nhận biết hạt sol khí cũng như xác định kích thước hạt trong thực nghiệm.

KẾT LUẬN CHƯƠNG 4

Chương 4 trình bày việc phát triển một hệ quang phổ hấp thụ vi sai ứng laser UV Ce:LiCAF cho việc xác định mật độ khí SO₂. Trong điều kiện phòng thí nghiệm, hệ quang phổ hấp thụ vi sai cho kết quả khảo sát với độ chính xác cao, sai số phép đo khoảng 6%. Các kết quả đạt được là cơ sở cho việc nghiên cứu xác định nồng độ các chất khí có phổ hấp thụ nằm trong vùng bước sóng UV trong khí quyển như SO₂, O₃, NO₂, NO...

Chương 4 cũng đã đánh giá cường độ tán xạ theo góc của một số hạt sol khí phổ biến trong khí quyển là carbon đen, carbon nâu và nước ô nhiễm bằng lý thuyết tán xạ Mie. Kết quả cho thấy hiệu quả của việc sử dụng vùng bước sóng ngắn hơn khảo sát tán xạ của các hạt sol khí. Hơn nữa khi đánh giá ảnh hưởng của bước sóng kích thích lên cường độ tán xạ ngược của , kết quả cho thấy vùng bước sóng 280 đến 290 nm hoặc từ 305 đến 320 nm là phù hợp cho các nghiên cứu về các hạt sol khí này

Các kết quả đạt được có thể mở rộng cho ứng dụng nhận biết các hạt sol khí cũng như xác định kích thước hạt sol khí này trong thực nghiệm.

KẾT LUẬN CHUNG

Với việc nghiên cứu động học và phát triển một hệ khuếch đại các xung laser UV sử dụng tinh thể Ce:LiCAF định hướng ứng dụng trong quan trắc môi trường, luận án đã đạt được một số kết quả chính như sau:

Động học phổ cho bộ khuếch đại Ce:LiCAF tám lần truyền qua đã được nghiên cứu tường minh, ảnh hưởng của công suất laser bơm, cũng như công suất và bước sóng laser tín hiệu lên công suất laser sau từng lần khuếch đại đã được nghiên cứu. Hiện tượng thu hẹp phổ trong quá trình khuếch đại đã được chứng minh. Chùm laser tín hiệu có đỉnh phổ ở bước sóng 288,5 nm và độ rộng phổ 10 nm sau tám lần khuếch đại đã bị thu hẹp về 3,5 nm. Laser tín hiệu có độ rộng phổ lớn thì hiện tượng thu hẹp phổ càng thể hiện rõ rệt, với laser tín hiệu có độ rộng phổ dưới 3 nm hiện tượng thu hẹp phổ trong quá trình khuếch đại gần như không đáng kể. Hiệu tượng dịch đỉnh phổ trong quá trình khuếch đại cũng đã được khảo sát, laser tín hiệu có độ rộng phổ 10 nm và đỉnh phổ tại bước sóng 292 nm sau tám lần khuếch đại đã dịch 3 nm về phía gần đỉnh phát xạ của môi trường Ce:LiCAF.

Hệ khuếch đại các xung laser UV băng rộng bốn lần truyền qua sử dụng tinh thể Ce:LiCAF đã được phát triển thành công, xung laser tín hiệu từ BCH Fabry-Perot với công suất 7 mW ở bước sóng đỉnh phổ 288,5 nm và độ rộng phổ 2 nm sau khi đi qua bộ khuếch đại, công suất laser thu được là 54 mW tương ứng với hệ số khuếch đại là 7,7. Hơn nữa, bằng việc sử dụng phương trình Frantz-Nodvik mở rộng, động học khuếch đại nhiều lần truyền qua của các xung laser UV băng rộng cũng đã được nghiên cứu tường minh. Các kết quả nghiên cứu lý thuyết và thực nghiệm cho thấy sự thống nhất cao với sai lệch khoảng 5%.

Hệ khuếch đại các xung laser UV băng hẹp cũng đã được phát triển thành công. Các xung laser UV băng hẹp từ BCH Littrow với công suất 7 mW ở bước sóng 288,5 nm sau bốn lần khuếch đại công suất laser thu được là 49 mW tương ứng với hệ số khuếch đại 7. Các kết quả mô phỏng bằng phương trình Frantz-Nodvik mở rộng và thí nghiệm cho thấy sự phù hợp cao.

Bước đầu ứng dụng laser UV Ce:LiCAF trong hệ quang phổ hấp thụ vi sai cho việc xác định mật độ khí SO₂. Kết quả khảo sát cho thấy độ chính xác cao với sai số phép đo 6%. Luận án cũng đã đánh giá cường độ tán xạ theo góc của một số hạt sol

khí phổ biến là carbon đen, carbon nâu và nước ô nhiễm. Kết quả cho thấy, hiệu quả của việc sử dụng vùng bước sóng ngắn khi khảo sát tán xạ của các hạt sol khí theo lý thuyết tán xạ Mie. Các kết quả có thể mở rộng cho ứng dụng nhận biết các hạt sol khí cũng như xác định kích thước hạt trong thực nghiệm.

Các kết quả nghiên cứu của luận án không chỉ có ý nghĩa khoa học mà còn cho thấy tính ứng dụng thực tiễn cao. Các hệ laser tử ngoại Ce:LiCAF có khuếch đại đã phát triển thành công cho thấy triển vọng ứng dụng của chúng trong nhiều lĩnh vực như y học, sinh học, và đặc biệt trong nghiên cứu về môi trường.

DANH MỤC CÁC CÔNG TRÌNH CÔNG BỐ LIÊN QUAN LUẬN ÁN

Công bố trong tạp chí thuộc danh mục ISI

- <u>Diep Van Nguyen</u>, Marilou Cadatal-Raduban, Duong Van Pham, Tu Xuan Nguyen, Thu Van Vu, Minh Hong Pham, *Tunable dual wavelength and narrow linewidth laser using a single solid-state gain medium in a double Littman resonator*, Optics Communications 496 (2021) 127131
- Duong Van Pham, <u>Diep Van Nguyen</u>, Tu Xuan Nguyen, Kieu Anh Thi Doan, Quan Minh Le, Minh Hong Pham, and Marilou Cadatal-Raduban, *Studying the Nonlinear Optical Properties of Fluoride Laser Host Materials in the Ultraviolet Wavelength Region*, Appl. Sci. (2022), 12, 372.
- Diep Van Nguyen, Marilou Cadatal-Raduban, Tu Xuan Nguyen, Duong Van Pham, Trung Van Dinh, Nobuhiko Sarukura, Minh Hong Pham, Theoretical and experimental study of ultraviolet broadband laser amplification using Ce:LiCAF crystal, Optics Communications Volume 530, (2022), 129165

Công bố trong tạp chí Quốc gia

4. <u>Nguyễn Văn Điệp</u>, Nguyễn Xuân Tú, Phạm Văn Dương, Nguyễn Thị Khánh Vân, Nguyễn Văn Minh, Vũ Văn Thú, Phạm Hồng Minh, Phát triển bộ khuếch đại laser tử ngoại, băng hẹp điều chỉnh bước sóng sử dụng tinh thể Ce:LiCAF định hướng nghiên cứu môi trường, Tạp chí Khoa học và Công nghệ Việt Nam-Bản B, (2022), DOI: 10.31276/VJST.65(8).29-34

Công bố trong kỷ yếu hội nghị Quốc gia

- 5. <u>Nguyễn Văn Điệp</u>, Phạm Văn Dương, Nguyễn Ngọc Anh, Vũ Văn Thú, Phạm Hồng Minh, *Phát đồng thời hai bức xạ laser tử ngoại đơn sắc điều chỉnh liên tục trên một dải phổ rộng với tinh thể Ce:LiCAF*, Tuyển tập báo cáo Hội nghị 45 năm Viện Hàn Lâm Khoa học và Công Nghệ Việt Nam 1975-2020, (2020), ISBN 978-604-9985-06-5.
- 6. Phạm Văn Dương, <u>Nguyễn Văn Điệp</u>, Nguyễn Xuân Tú, Nguyễn Xuân Quyết, Nguyễn Thành Công, Lê Cảnh Trung, Phạm Hồng Minh, Nghiên cứu động học phát xạ băng hẹp điều chỉnh bước sóng của laser tử ngoại

Ce:LiCAF bằng cách tử, Kỉ yếu hội nghị Vật lý Thừa Thiên Huế 2021, **2021**, ISBN 978-604-974-605-4.

 <u>Nguyễn Văn Điệp</u>, Phạm Văn Dương, Phạm Hồng Minh, Nghiên cứu các đặc tính phi tuyến của vật liệu Ce:LiCAF trong vùng bước sóng tử ngoại, Advances in Optics, Photonics, Spectroscopy & Applications XII, (2022), ISBN: 978-604-357-120-2.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

- N.Shahrubudin, T.C.Lee, R.Ramlan, An Overview on 3D Printing Technology: Technological, Materials, and Applications, Procedia Manufacturing, 35 (2019) 1286.
- [2] Semyon YakovlevSergey, Sadovnikov Olga, Kharchenko Olga, Kharchenko Natalya Kravtsova, *Remote Sensing of Atmospheric Methane with IR OPO Lidar System*, Atmosphere, 11 (2020) 70.
- [3] Guoqing Zhou, Xiang Zhou, Youjian Song, Donghui Xie, Long Wang, Guangjian Yan, Design of supercontinuum laser hyperspectral light detection and ranging (LiDAR), International Journal of Remote Sensing, 42 (2021) 3731.
- [4] Alexander Maninagat Luke, Simy Mathew, Maram Majed Altawash, Bayan Mohammed Madan, *Lasers: A Review With Their Applications in Oral Medicine*, Journal of Lasers in Medical Sciences, 10 (2019) 324.
- [5] S. Jeppson, R. Kukreja, *Capturing ultrafast magnetization phenomenon using femtosecond X rays*, APL Mater, 9 (2021) 100702.
- [6] M Verlinde, R Ferrer, A Claessens, C A Granados, S Kraemer, Yu Kudryavtsev, D Li, P Van den Bergh, P Van Duppen, E Verstraelen, *Single-longitudinal-mode pumped pulsed-dye amplifier for high-resolution laser spectroscopy*, Review of Scientific Instruments, 91 (2020) 103002.
- Y. Yu, S. P. Zhao, D. S. Xia, J. J. He, N. Liu & J. B. Chen, Characteristics of aerosol particle size distributions in urban Lanzhou, north-western China, Conference: Air Pollution, (2011), 147.
- [8] Yanyun Zhang, Jianlei Lang, Shuiyuan Cheng, Shengyue Li, Ying Zhou, Dongsheng Chen, Hanyu Zhang, Haiyan Wang, *Chemical composition and sources of PM1 and PM2.5 in Beijing in autumn*, Science of The Total Environment Volume 630, 15 (2018) 72-82.
- [9] Jianlei Lang , Yanyun Zhang, Ying Zhou, Shuiyuan Cheng, Dongsheng Chen, Xiurui Guo, Sha Chen, Xiaoxin Li, Xiaofan Xing, Haiyan Wang, *Trends of PM2.5* and Chemical Composition in Beijing, 2000–2015. Aerosol Air Qual. Res. 17 (2017) 412-425.

- [10] Pinliang Dong, Qi Chen, *Lidar remote sensing and applications*, CRC Press, ISBN 9781138747241, (2018).
- [11] Frank Beyrau, Joakim Bood, Paul Hsu, Johannes Kiefer, Thomas Seeger, Hans Stauffer, Laser applications to chemical, security, and environmental analysis: introduction to the feature issue, Applied Optics Vol. 60, 15 (2021) pp. LAC1-LAC3.
- [12] Russell De Young, William A Carrion, Rene Ganoe, Denis Pliutau, G. Gronoff, Shi Kuang, Langley mobile ozone lidar: ozone and aerosol atmospheric profiling for air quality research, Applied Optics Vol. 56, Issue 3 (2017) pp. 721-730
- [13] Karl F. Renk, Basics of Laser Physics For Students of Science and Engineering, Springer International Publishing, ISBN 3319506528, (2017).
- [14] Walter Koechner, Solid-State Laser Engineering, Springer Science, ISBN-10: 0-387-29094-X, (2006).
- [15] Masahiro Kouno, Jacque Lynn Gabayno, Marilou Cadatal-Raduban, Minh Pham, Kohei Yamanoi, Elmer Estacio, Wilson Garcia, Tomoharu Nakazato, Toshihiko Shimizu, Nobuhiko Sarukura, Toshihisa Suyama, Kentaro Fukuda, Kyoung Jin Kim, Akira Yoshikawa, Fumio Saito, *Micro-pulling-down-methodgrown Ce:LiCAF crystal for side-pumped laser amplifier, Journal of Crystal Growth*, 318 (2011) 737.
- [16] Jacque Lynn Gabayno, Marilou Cadatal-Raduban, Minh Pham, Kohei Yamanoi, Elmer Estacio, Wilson Garcia, Tomoharu Nakazato, Toshihiko Shimizu, Nobuhiko Sarukura, Toshihisa Suyama, Kentaro Fukuda, Kyoung Jin Kim, Akira Yoshikawa, Fumio Saito, *Amplification of Ultraviolet Femtosecond Pulse by a Micro-Pulling Down Method-Grown Ce:LiCAF Crystal in a Prismatic Cell-Type, Side-Pumping Configuration*. Japanese Journal of Applied Physics, 48 (2009) 120213.
- [17] Minh H. Pham, Marilou M. Cadatal, Toshihiro Tatsumi, Ayumi Saiki, Yusuke Furukawa, Tomoharu Nakazato, Elmer Estacio, Nobuhiko Sarukura, Toshihisa Suyama, Kentaro Fukuda, *Laser Quality Ce³⁺:LiCaAlF₆ Grown by Micro-Pulling-Down Method*, Jpn. J. Appl. Phys, 47 (2008) 5605.

- [18] Minh Hong Pham, Marilou Cadatal-Raduban, Mui Viet Luong, Hai Hoang Le, Kohei Yamanoi, Tomoharu Nakazato, Toshihiko Shimizu, Nobuhiko Sarukura & Hung Dai Nguyen, *Numerical simulation of ultraviolet picosecond Ce:LiCAF laser emission by optimized resonator transients*, Jpn. J. Appl. Phys. 53 (2014) 062701.
- [19] Cadatal-Raduban, Marilou; Pham, Minh Hong; Pham, Duong Van; Bui, Duong Thi Thuy; Yamanoi, Kohei; Takeda, Kohei; Empizo, Melvin John F.; Mui, Luong Viet; Shimizu, Toshihiko; Nguyen, Hung Dai; Sarukura, Nobuhiko; Fukuda, Tsuguo, *Total internal reflection-based side-pumping configuration for terawatt ultraviolet amplifier and laser oscillator development*. Appl. Phys. B, 124 (2018) 125.
- [20] Mui Viet Luong, Melvin John F. Empizo, Marilou Cadatal-Raduban, Ren Arita, Yuki Minami, Toshihiko Shimizu, Nobuhiko Sarukura, Hiroshi Azechi, Minh Hong Pham, Hung Dai Nguyen, Yoshiyuki Kawazoe, Krista G. Steenbergen, Peter Schwerdtferger, *First-principles calculations of electronic and optical properties of LiCaAlF*₆ and LiSrAlF₆ crystals as VUV to UV solid-state laser *materials*, Optical Materials, 65 (2017) 15.
- [21] Mui Viet Luong, Marilou Cadatal-Raduban, Melvin John F. Empizo, Ren Arita, Yuki Minami, Toshihiko Shimizu, Nobuhiko Sarukura, Hiroshi Azechi, Minh Hong Pham, Hung Dai Nguyen, *Comparison of the electronic band structures* of LiCaAlF₆ and LiSrAlF₆ ultraviolet laser host media from ab initio calculations, Jpn. J. Appl. Phys, 54 (2015) 122602.
- [22] Toshihiko Shimizu, Mui Viet Luong, Marilou Cadatal-Raduban, Melvin John
 F. Empizo, Kohei Yamanoi, *High pressure band gap modification of LiCaAlF₆*,
 Appl. Phys. Lett, 110 (2017) 141902.
- [23] V V Semashko, O R Akhtyamov, A A Shavelev, N F Rakhimov & A V Lovchev. Z-scan technique to study gain properties of optically pumped media, Laser Physics Letters, 15(3) (2018) 035702.
- [24] David W. Coutts, Andrew J. S. McGonigle, *Cerium-Doped Fluoride Lasers*, ieee journal of quantum electronics, 40.10 (2004) 1430.

- [25] C. Marshall, J. Speth, S. Payne, W. Krupke, G. Quarles, V. Castillo, B. Chai, *Ultraviolet laser emission properties of Ce³⁺-doped LiSrAlF₆ and LiCaAlF₆*, Journal of the Optical Society of America B. 11.10 (**1994**) pp. 2054-2065.
- [26] Eduardo Granados, David W. Coutts, and David J. Spence, *Mode-locked deep ultraviolet Ce:LiCAF laser*, OPTICS LETTERS, 34 (2009) 1660.
- [27] Adam Sharp, Ondrej Kitzler, Alex Fuerbach, David J. Spence, and David W. Coutts, Generation of sub-100 fs ultraviolet pulses from a Kerr-lens modelocked Ce:LiCAF laser, Applied Optics, 60 (2021) 8316
- [28] Marilou Cadatal-Raduban, Kohei Yamanoi, Minh Hong Pham, Takaya Taniguchi, Xi Yu, Nobuhiko Sarukura, Shingo Ono, *Effect of doping* distribution on the lasing performance of a cerium-doped lithium calcium aluminum fluoride ultraviolet laser crystal, Journal of Crystal Growth Volume, 15 (2021) 574.
- [29] Akira Yoshikawa, Tsuguo Fukuda, Tsuguo Fukuda, Challenge and study for developing of novel single crystalline optical materials using micro-pullingdown method, Optical Materials, 30(1) (2007) pp 6-10.
- [30] Takayuki Yanagida, Akira Yoshikawa, Yuui Yokota, Shuji Maeo, Noriaki Kawaguchi, Sumito Ishizu, Kentaro Fukuda, Toshihisa Suyam, *Crystal growth, optical properties, and α-ray responses of Ce-doped LiCaAlF6 for different Ce concentration*, Optical Materials, 32 (2) (2009) pp. 311-314.
- [31] Barbara Wellmann, Ondrej Kitzler, David J Spence, David W Coutts, *Linewidth narrowing of a tunable mode-locked pumped continuous-wave Ce:LiCAF laser*, Optics Letters 40. 13 (2015) 3065.
- [32] Viktor A. Fromzel, Coorg R. Prasad, Karina B. Petrosyan, Yishinn Liaw, Mikhail A. Yakshin, Wenhui Shi, and and Russell DeYoung, *Tunable, Narrow Linewidth, High Repetition Frequency Ce:LiCAF Lasers Pumped by the Fourth Harmonic of a Diode-Pumped Nd:YLF Laser for Ozone DIAL Measurements,* Advances in Optical and Photonic Devices, INTECH (2010) 101-116.
- [33] Pham Minh Tien, Bui Van Hai, Duong Tien Tho, Dinh Van Trung, Development of UV Laser Source Based on Distributed Feedback Dye Lasers
Foruse in Measurement of Ozone in the Lower Atmosphere, Communications in Physics, 27. 4 (**2017**) pp. 345-355,

- [34] Pham Minh Hong, Cadatal-Raduban Marilou, Van Pham Duong, Nguyen Tu Xuan, Viet Luong Mui, Yamanoi Kohei, Shimizu Toshihiko, Sarukura Nobuhiko, Nguyen Hung Dai, *Tunable narrow linewidth picosecond pulses* from a single grating gain-switched Ce:LiCAF laser, Laser Phys. 28 (2018) 085802 (5pp).
- [35] Luận án tiến sĩ Phạm Văn Dương, Nghiên cứu các tính chất động học của hệ laser toàn rắn, phát trực tiếp bức xạ tử ngoại sử dụng vật liệu pha tạp ion Ce³⁺, Viện Hàn lâm Khoa học và Công nghệ Việt Nam, (2018).
- [36] Shingo Ono, Yuji Suzuki, Toshimasa Kozeki, Hidetoshi Murakami, Hideyuki Ohtake, Nobuhiko Sarukura, Hiroki Sato, Susumu Machida, Kiyoshi Shimamura, and Tsuguo Fukuda, *High-energy, all-solid-state, ultraviolet laser power-amplifier module design and its output-energy scaling principle*, Applied Optics, 41 (2002) 7556.
- [37] Zhenlin Liu, Toshimasa Kozeki, Yuji Suzuki, Nobuhiko Sarukura, Kiyoshi Shimamura, Tsuguo Fukuda, Masahiro Hirano & Hideo Hosono. Ultraviolet Femtosecond Pulse Amplification with High Gain Using SolidState, Broad-Band Gain Medium Ce³⁺:LiCaAlF₆. Jpn. J. Appl. Phys, 40 (2001) 2308.
- [38] Zhenlin Liu, Toshimasa Kozeki, Yuji Suzuki, Nobuhiko Sarukura, Kiyoshi Shimamura, Tsuguo Fukuda, Masahiro Hirano, and Hideo Hosono, *Chirpedpulse amplification of ultraviolet femtosecond pulses by use of Ce³⁺:LiCaAlF₆ as a broadband, solid-state gain medium.* Optics Letters, 26 (2001) 301.
- [39] P. Kroetz, A. Ruehl, A.-L. Calendron, G. Chatterjee, H. Cankaya, K. Murari, F. X. Kärtner, I. Hartl & R. J. D. Miller Study on laser characteristics of Ho:YLF regenerative amplifiers: Operation regimes, gain dynamics, and highly stable operation points. Applied Physics B (2017) 123(4).
- [40] Duong Van Pham, Diep Van Nguyen, Tu Xuan Nguyen, Kieu Anh Thi Doan, Quan Minh Le, Minh Hong Pham, and Marilou Cadatal-Raduban, *Studying the Nonlinear Optical Properties of Fluoride Laser Host Materials in the Ultraviolet Wavelength Region*, Appl. Sci. (2022), 12, 372.

- [41] Nguyễn Văn Điệp, Phạm Văn Dương, Phạm Hồng Minh, Nghiên cứu các đặc tính phi tuyến của vật liệu Ce:LiCAF trong vùng bước sóng tử ngoại, Advances in Optics, Photonics, Spectroscopy & Applications XII, (2022), ISBN: 978-604-357-120-2.
- [42] Paschotta, Dr. Rüdiger, https://www.rp-photonics.com/thermal_lensing.html, (2018).
- [43] Jean-Claude Diels, Ultrashort Laser Pulse Phenomena Fundamentals, Academic Press Inc, ISBN 13: 978-0-12-215493-5, (2006).
- [44] Nie M, Liu Q, Ji E, Cao X, Fu X, & Gong M, Design of High-Gain Single-Stage and Single-Pass Nd: YVO4 Amplifier Pumped by Fiber-Coupled Laser Diodes: Simulation and Experiment. IEEE Journal of Quantum Electronics, (2016), 52(8), 1–10.
- [45] Yutao Huang, Hongbo Zhang, Xiaochao Yan, Zhijun Kang, Fuqiang Lian and Zhongwei Fan, A High Peak Power and High Beam Quality Sub-Nanosecond Nd:YVO4 Laser System at 1 kHz Repetition Rate without SRS Process, Appl. Sci. 9(23), (2019) 5247.
- [46] S Ricaud, P Georges, P Camy, J.-L Doualan, R Moncorgé, A Courjaud, E Mottay & F Druon, *Diode-pumped regenerative Yb:SrF₂ amplifier*, Appl Phys B (2012) 106:823–827.
- [47] Yi Zheng, Jinglong Ma, X. Ge, Yutong Li, Zhiyi Wei, Jie Zhang, A multipass Ti:sapphire laser amplifier pumped with homogenized Nd:YAG lasers, Chinese Optics Letters, (2014), S21412, 1671-7694
- [48] Georges P, Estable F, Salin F, Poizat J. P, Grangier P, & Brun A, Highefficiency multipass Ti:sapphire amplifiers for a continuous-wave single-mode laser. Optics Letters, 16(3) (1991) 144.
- [49] Ruiz De La Cruz, A, & Rangel-Rojo. R, Compact multi-pass amplifier for chirped-pulse amplification. Journal of Modern Optics, 53(3), (2006) 307–311.
- [50] Lee M. Frantz; John S. Nodvik, *Theory of Pulse Propagation in a Laser Amplifier*, Journal of Applied Physics 34, (1963) 2346–2349

- [51] Peter Kroetz, Axel Ruehl, Gourab Chatterjee, Anne-Laure Calendron, Krishna Muraria, Huseyin Cankaya, Franz X Kärtnera, Ingmar Hartl, R J Dwayne Miller, *High energetic and highly stable pulses from a Ho:YLF regenerative amplifier*, Proceedings Volume 9726, Solid State Lasers XXV: Technology and Devices, (2016) 97260S.
- [52] Bingnan Shi, Jiatong Li, Shuai Ye, Hongkun Nie, Kejian Yang, Jingliang He, Tao Li, and Baitao Zhang, *Modified Frantz-Nodvik equation and numerical simulation of a high-power Innoslab picosecond laser amplifier*, Optics Express, 30. 7 (2022) pp. 11026-11035.
- [53] Jihoon Jeong, Seryeyohan Cho, and Tae Jun Yu, Numerical extension of Frantz–Nodvik equation for double-pass amplifiers with pulse overlap, Vol. 25, Issue 4, (2017) 3946-3953.
- [54] Peter Kroetz, Axel Ruehl, Krishna Murari, Huseyin Cankaya, Franz X. Kärtner, Ingmar Hartl, and R. J. Dwayne Miller, *Numerical study of spectral shaping in high energy Ho:YLF amplifiers*, Optics Express, Vol. 24, Issue 9 (2016) pp. 9905-9921.
- [55] A.A. Shavelev, A.S. Nizamutdinov, M.A. Marisov, I.I. Farukhshin, O.A. Morozov, N.F. Rakhimov, E.V. Lukinova, S.L. Korableva, V.V. Semashko, Single crystals with advanced laser properties LiCaAlF6:Ce³⁺ grown by Bridgman technique, Journal of Crystal Growth 485, (2018), 73–77.
- [56] Łukasz Bohdal, Leon Kukiełka, Radosław Patyk, Rafał Gryglicki, Piotr Kasprzak, Application of Ultraviolet Laser Working in Cold Ablation Conditions for Cutting Labels Used in Packaging in the Food Industry, Materials 13(22) (2020) 5245.
- [57] Alexander Maninagat Luke, Simy Mathew, Maram Majed Altawash, Bayan Mohammed Madan, Lasers: A Review With Their Applications in Oral Medicine, J Lasers Med Sci, 10(4) (2019) 324–329.
- [58] Hans Joachim Eichler, Lasers Basics, Advances and Applications, Springer International Publishing, ISBN 3319998951, (2018).
- [59] Nie Shilin, Guan Yingchun. Review of UV laser and its applications in micromachining, Opto-Electronic Engineering, 44(12) (2017) 1169–1179.

- [60] F.J. Duarte, *Tunable Laser Applications*, 3thrd, CRC Press Taylor & Francis Group, ISBN 9780429183393 (2016).
- [61] Howard Marylesa, Luttman Aaron, Marks Daniel, Frayer Daniel, *Mie Scattering Analysis*. United States, (2016). Web. doi: 10.2172/1755228.
- [62] Curtis Mobley, *Mie Theory Overview*, level 2, Ocean optics book, (2021)
- [63] Miguel Vazquez-Pufleau & Paul M. Winkler, Development of an ultraviolet constant angle Mie scattering detector toward the determination of aerosol growth kinetics in the transition and free molecular regime, Aerosol Science and Technology Volume 54.8 (2020) 917-928.
- [64] Diep Van Nguyen, Marilou Cadatal-Raduban, Tu Xuan Nguyen, Duong Van Pham, Trung Van Dinh, Nobuhiko Sarukura, Minh Hong Phama, *Theoretical* and experimental study of ultraviolet broadband laser amplification using Ce:LiCAF crystal, Optics Communications Volume 530, (2022), 129165
- [65] Nguyễn Văn Điệp, Nguyễn Xuân Tú, Phạm Văn Dương, Nguyễn Thị Khánh Vân, Nguyễn Văn Minh, Vũ Văn Thú, Phạm Hồng Minh, Phát triển bộ khuếch đại laser tử ngoại, băng hẹp điều chỉnh bước sóng sử dụng tinh thể Ce:LiCAF định hướng nghiên cứu môi trường, Tạp chí Khoa học và Công nghệ Việt Nam-Bản B, (2022), DOI: 10.31276/VJST.65(8).29-34
- [66] Pham H. Minh, Doan Hai Son, Do Quoc Khanh, Nguyen Dai Hung, Spectral and temporal characteristics of picosecond quenching cavity solid-state dye lasers, International Workshop on Photonics and Applications, ISBN: 978-604-913-578, (2014).
- [67] Pham Hong Minh, Pham Van Duong, Pham Huy Thong, Do Quoc Khanh, Nguyen Dai Hung, Nobuhiko Sarukura, Possibility of generation and amplification to high powerof ultraviolet Ce:LiCAF laser short pulses, Communications in Physics, Vol. 24, No. 3S2 (2014) pp. 89-100.
- [68] Diep Van Nguyen, Marilou Cadatal-Raduban, Duong Van Pham, Tu Xuan Nguyen, Thu Van Vu, Minh Hong Pham, *Tunable dual wavelength and narrow linewidth laser using a single solid-state gain medium in a double Littman resonator*, Optics Communications 496 (2021) 127131

- [69] Phạm Văn Dương, Nguyễn Văn Điệp, Nguyễn Xuân Tú, Nguyễn Xuân Quyết, Nguyễn Thành Công, Lê Cảnh Trung, Phạm Hồng Minh, Nghiên cứu động học phát xạ băng hẹp điều chỉnh bước sóng của laser tử ngoại Ce:LiCAF bằng cách tử, Kỉ yếu hội nghị Vật lý Thừa Thiên Huế 2021, 2021, ISBN 978-604-974-605-4.
- [70] Francisco J. Duarte, Tunable Laser Optics, (2003), Elsevier Science (USA), https://doi.org/10.1016/B978-012222696-0/50054-5.
- [71] M.G. Littman, H.J. Metcalf, *Spectrally narrow pulsed dye laser without beam expander*, Appl. Opt. 17 (**1978**) 2224.
- [72] Stephanie E. WhiteMaria, CatalunaMaria Ana Cataluna, Unlocking Spectral Versatility from Broadly–Tunable Quantum–Dot Lasers, Photonics (2015), 2, 719-744; doi:10.3390/photonics2020719.
- [73] T Fujii, T Fukuchi, N Goto, K Nemoto & N Takeuchi, Dual Differential Absorption Lidar for the Measurement of Atmospheric SO(2) of the Order of Parts in 10(9), Appl. Opt. 40 (2001) 949
- [74] Lei Guo, Ruijun Lan, Hong Liu, Haohai Yu, Huaijin Zhang, Jiyang Wang, Dawei Hu, Shidong Zhuang, Lijuan Chen, Yongguang Zhao, Xinguang Xu, and Zhengping Wang, 1319 nm and 1338 nm dual-wavelength operation of LD endpumped Nd:YAG ceramic laser, Opt. Express 18 (2010) 9098.
- [75] B. Yao, Y. Tian, G. Li, Y. Wang, InGaAs/GaAs saturable absorber for diodepumped passively Q-switched dual-wavelength Tm:YAP lasers, Opt. Exp. 18
 (2010) 13574.
- [76] H. Yoshioka, S. Nakamura, T. Ogawa, S. Wada, *Dual-wavelength mode-locked Yb:YAG ceramic laser in single cavity*, Opt. Exp. 18 (2010) 1479.
- [77] Xiangeng Meng, Jingjing Liu, Alexander V. Kildishev, Vladimir M. Shalaev. Highly directional spaser array for the red wavelength region, Laser & Photonics Review, vol. 8, issue 6, (2014), pp. 896-903.
- [78] G. Langfelder, *Design Criteria of Low-Power Oscillators for Consumer-Grade MEMS Resonant Sensors*, Industrial Electronics, IEEE Transactions on, vol. 61, no. 1, (2014). pp. 567-574.

- [79] Jing Na, Adaptive Prescribed Performance Motion Control of Servo Mechanisms with Friction Compensation, Industrial Electronics, IEEE Transactions on, vol. 61, no. 1, (2014). pp. 486-494.
- [80] Yungang Zhang, Yongda Wang, Yunjie Liu, Xuejia Dong, Hua Xia, Zhiguo Zhang, Jimeng Li, Optical H2S and SO2 sensor based on chemical conversion and partition differential optical absorption spectroscopy, Spectrochimica Acta Part A: Molecular and Biomolecular Spectroscopy Volume 210, 5 (2019), 120-125
- [81] Mriganka Sekhar Biswas, Sachin D. Ghude, Dinesh Gurnale, Thara Prabhakaran, Anoop S. Mahajan, *Simultaneous Observations of Nitrogen Dioxide*, Formaldehyde and Ozone in the Indo-Gangetic Plain, Aerosol and Air Quality Research, 19: (2019) 1749–1764.
- [82] Wei Tan, Cheng Liu, Shanshan Wang, Chengzhi Xing, Wenjing Su, Chengxin Zhang, Congzi Xia, Haoran Liu, Zhaonan Cai, and Jianguo Liu, *Tropospheric NO₂*, SO₂, and HCHO over the East China Sea, using ship-based MAX-DOAS observations and comparison with OMI and OMPS satellite data, Articles Volume 18, issue 20 ACP, 18, (2018),15387–15402.
- [83] Ermioni Dimitropoulou, François Hendrick, Gaia Pinardi, Martina M. Friedrich, Alexis Merlaud, Frederik Tack, Helene De Longueville, Caroline Fayt, Christian Hermans, Quentin Laffineur, Frans Fierens, Validation of TROPOMI tropospheric NO2 columns using dual-scan multi-axis differential optical absorption spectroscopy (MAX-DOAS) measurements in Uccle, Brussels, Articles Volume 13, issue 10 AMT, 13, (2020) 5165–5191,
- [84] K Bogumil, J Orphal, T Homann, S Voigt, P Spietz, O.C Fleischmann, A Vogel, M Hartmann, H Kromminga, H Bovensmann, J Frerick, J.P Burrows, *Measurements of molecular absorption spectra with the SCIAMACHY preflight model: instrument characterization and reference data for atmospheric remote-sensing in the 230–2380 nm region*, Journal of Photochemistry and Photobiology A: Chemistry Volume 157, Issues 2–3, 5 (2003) 167-184.
- [85] Zhaolun Cui, Xiaoxing Zhang, Zheng Cheng, Yalong Li, Hai Xiao, *Quantitative* analysis of SO₂, H₂S and CS₂ mixed gases based on ultraviolet differential

absorption spectrometry, Spectrochimica Acta Part A: Molecular and Biomolecular Spectroscopy Volume 215, 15 (**2019**) 187-195

- [86] AbdulAziz Al-Jalal, Watheq Al-Basheer, Khaled Gasmi, Moch S. Romadhon, Measurement of low concentrations of NO₂ gas by differential optical absorption spectroscopy method, Measurement Volume 146, (2019) 613-617
- [87] Liang Mei, Peng Guan, and Zheng Kong, Remote sensing of atmospheric NO₂ by employing the continuous-wave differential absorption lidar technique, Optics Express Vol. 25, Issue 20, (2017) A953-A962
- [88] Hossein Ghaforyan, Majid Ebrahimzadeh, Sara Mohammadi Bilankohi, Study of the Optical Properties of Nanoparticles using Mie Theory, World appl. programming, Vol(5), No (4), (2015) 79-82.
- [89] S. K. Monfared, W. T. Buttler, D. K. Frayer, M. Grover, B. M. LaLone, G. D. Stevens, J. B. Stone, W. D. Turley, M. M. Schauer, *Ejected particle size measurement using Mie scattering in high explosive driven shockwave experiments*, Journal of Applied Physics 117, (2015) 223105.
- [90] Ilpo Niskanen, Viviane Forsberg, Daniel Zakrisson, Salim Reza, Magnus Hummelgård, Britta Andres, Igor Fedorov, Terhi Suopajärvi, Henrikki Liimatainen, Göran Thungström, *Determination of nanoparticle size using Rayleigh approximation and Mie theory*, Chemical Engineering Science Volume 201, 29 (2019) 222-229.
- [91] Luong Viet Mui, Tran Ngoc Hung, Keito Shinohara, Kohei Yamanoi, Toshihiko Shimizu, Nobuhiko Sarukura, Hikari Shimadera, Akira Kondo, Yoshinori Sumimura, Bui Van Hai, Diep Van Nguyen, Pham Hong Minh, Dinh Van Trung, Marilou Cadatal-Raduban, *Elastic Scattering Time–Gated Multi–Static Lidar Scheme for Mapping and Identifying Contaminated Atmospheric Droplets*, Appl. Sci 13 (2023) 172.
- [92] Benjamin J. Sumlin, Yuli W. Heinson, Nishit Shetty, Apoorva Pandey, Robert S. Pattison, Stephen Baker, Wei Min Hao, Rajan K. Chakrabarty, UV-Vis-IR Spectral Complex Refractive Indices and Optical Properties of Brown Carbon Aerosol from Biomass Burning, Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer Volume 206, (2018), 392-398

PHŲ LŲC

			PHŲ LŲC
A. Tiết diệr	n hấp thụ	và phát	xạ của Ce:LiCAF
265.0000	5.5204	0.1111	
265.5000	5.5673	0.1153	
266.0000	5.5553	0.1165	
266.5000	5.5197	0.1145	
267.0000	5.4444	0.1127	
267.5000	5.2979	0.1150	
268.0000	5.0868	0.1248	
268.5000	4.9420	0.1403	
269.0000	4.5919	0.1570	
269.5000	4.2387	0.1709	
270.0000	3.8575	0.1821	
270.5000	3.7330	0.1930	
271.0000	3.6027	0.2061	
271.5000	3.3091	0.2250	
272.0000	3.0545	0.2581	
272.5000	2.9256	0.3131	
273.0000	2.7801	0.3830	
273.5000	2.5590	0.4529	
274.0000	2.3222	0.5168	
274.5000	2.2527	0.5835	
275.0000	1.7957	0.6950	
275.5000	1.7490	0.8704	
276.0000	1.7667	1.1804	
276.5000	1.4784	1.2086	
277.0000	1.3081	1.5266	
277.5000	1.2524	1.9390	
278.0000	1.1394	2.1930	
278.5000	1.0224	2.4426	
279.0000	0.9285	2.5797	
279.5000	0.8607	2.9747	
280.0000	0.8093	3.3367	
280.5000	0.7470	3.6396	
281.0000	0.6672	4.0194	
281.5000	0.5944	4.3430	
282.0000	0.5483	4.7156	
282.5000	0.5170	5.0633	
283.0000	0.4824	5.4504	
283.5000	0.4429	5.8848	
284.0000	0.4079	0.3512	
284.5000	0.3821	0.4855	
285.0000	0.3628	6./485	
285.5000	0.3467	6.8820	
286.0000	0.3305	/.1311	
286.5000	0.3114	1.5/13	
287.0000	0.2867	1.4271	

287.5000	0.2553	7.4409
288.0000	0.2229	7.5165
288.5000	0.1979	7.5117
289.0000	0.1867	7.2807
289.5000	0.1868	7.2076
290.0000	0.1930	6.9913
290.5000	0.2002	6.7203
291.0000	0.2050	6.4603
291.5000	0.2059	6.2314
292.0000	0.2010	5.9290
292.5000	0.1890	5.6938
293.0000	0.1713	5.2917
293,5000	0.1522	4.9600
294,0000	0.1358	4.6185
294 5000	0.1261	4 4651
295,0000	0.1201	4 2228
295,5000	0.1256	3 7779
296,0000	0.1287	3 6690
296 5000	0.1207	3 5736
297 0000	0.1275	3 3913
297.5000	0.1273	3 2209
298.0000	0.1224	2 9801
298 5000	0.1101	2.9001
298.3000	0.1103	2.6294
299.5000	0.1004	2.0625
300,0000	0.1050	2.0007
300.0000	0.1055	2.4347
301.0000	0.1000	2.3038
301.0000	0.1000	2.2312
202.0000	0.1090	2.1907
202.0000	0.1095	2.1550
202.0000	0.1095	2.0044
303.0000	0.1090	2.0047
204 0000	0.1061	1.9047
204.0000	0.1009	1.9427
205.0000	0.1030	1.9308
303.0000	0.1045	1.9101
206.0000	0.1030	1.8943
306.0000	0.1058	1.8002
306.5000	0.1051	1.8233
307.0000	0.10/9	1.7500
307.3000	0.1124	1.7012
308.0000	0.1177	1./013
308.3000	0.1230	1.64/3
309.0000	0.12/3	1.6027
309.3000	0.1298	1.5/46
310.0000	0.1295	1.5388
310.5000	0.1266	1.4632

311.0000	0.1221	1.3619
311.5000	0.1166	1.3093
312.0000	0.1112	1.2926
312.5000	0.1067	1.2717
313.0000	0.1036	1.2160
313.5000	0.1020	1.1424
314.0000	0.1019	1.0804
314.5000	0.1033	1.0353
315.0000	0.1062	0.9923
315.5000	0.1107	0.9427
316.0000	0.1161	0.8893
316.5000	0.1221	0.8364
317.0000	0.1278	0.7867
317.5000	0.1324	0.7378
318.0000	0.1356	0.6875
318.5000	0.1370	0.6364
319.0000	0.1361	0.5883
319.5000	0.1326	0.5461
320.0000	0.1263	0.5095
320.5000	0.1175	0.4771

B. Chương trình mô phỏng khuếch đại

```
clear all; clc; close all; format long
% sing=[wavelength gain emission absoption ]
sig = [];
sigmas(:,1)=sig(:,1);
                          % buoc song
sigmas(:,2)=1e-22*sig(:,2);
                             % gain (emmission - ASE)
sigmas(:,3)=1e-22*sig(:,4);
                             % hap thu
%% tinh cac gia tri cho toan miem pho
% beta tai dinh hap thu 266 va phat xa 288.5: beta=hap thu/(hap thu + phat xa)
               % He so nghich dao do tich luy, chon gia tri 35 %;
beta0=0.5:
beta1 = 7.4997/(7.4997+0.117);
                                  % beta tai dinh hap thu
                                                                           7.4997
                                                           266
                                                                  0.117
=0.9846
beta2 = 0.2671/(0.2671+5.621);
                                  % beta tai dinh phat xa
                                                           288.5 5.621
                                                                           0.2671
=0.0454
eg0=beta0*(sigmas(:,2)+ sigmas(:,3))- sigmas(:,3); % tiet dien pho khuech dai voi
beta0
eg1=beta1*(sigmas(:,2)+ sigmas(:,3))- sigmas(:,3); % tiet dien pho khuech dai voi
beta1, dinh hap thu
eg2=beta2*(sigmas(:,2)+ sigmas(:,3))- sigmas(:,3); % tiet dien pho khuech dai voi
beta2, dinh phat xa
y=sigmas(:,1)*0;
%% Load absorption and emission cross sections
%% Wavelength ranges for pump
wavelength_P=linspace(264,268,100); % Define pump wavelengths
Abs_pump=spline(sigmas(:,1),sigmas(:,2),wavelength_P); % hàm noi suy tiet dien
hap thu
```

Ems_pump=spline(sigmas(:,1),sigmas(:,3),wavelength_P); % hàm noi suy tiet dien phat xa PP=[(1e-9*wavelength_P)', Abs_pump', Ems_pump']; sigmas_pump=PP; %% Wavelength ranges for pump and seed wavelength_S=linspace(284,296,4000); % Define pump wavelengths Abs_seed=spline(sigmas(:,1),sigmas(:,2),wavelength_S); % hàm noi suy tiet dien hap thu Ems seed=spline(sigmas(:,1),sigmas(:,3),wavelength S); % ham noi suy tiet dien phat xa SS=[(1e-9*wavelength S)', Abs seed', Ems seed']; sigmas_seed=SS; %% RA starting parameters p_inv_start=0.0455; % Initial inversion prior pumping cycle (here: 24.5 % is value for Ho:YLF when it is transparent for the seed wavelength) %% Slicing Parameters defining the number of slices the pump and seed fluence is sliced in N_pump_slices=20; N_seed_slices=20; Number_of_single_passes=4; %% Define Laser Amplifier Parameters N_gain_ion_density=5*10^23; % m^3 (here this value is 1 % Holmium in YLF) T_losses=0.8; % Single pass losses h=6.62606957*10^(-34); % W*s c=3*10^8; % m/s $tau_gain=25*(10^{-9});$ % s, Gain life time of Ho:YLF %% chieu dai khuech dai length crystal=0.008; % m a=0.005: % chieu cao & va sau cua tinh the anpha=[3 3 6 6]*pi/180; % goc giua chum bom va chum tin hieu length_crystal-1/(4*a)*((length_crystallength amply= $a*tan(anpha/2)).^2).*tan(anpha/2)./(1-tan(anpha/2))$ % m Pump_power=0.08; % W pump_time=0.1; % s radius_laser_and_pump_mode=0.0005; % m % Define spectral pump pulse (with Gaussian spectrum, but could be any shape in principle) Pump_fluence=Pump_power*pump_time/(radius_laser_and_pump_mode^2*pi); FWHM_Gauss_pump=1*10^-9; % m sigma_gauss_pump=FWHM_Gauss_pump/2.35; % nm lambda_0=266*10^-9; % m delta_lambda_pump=sigmas_pump(2,1)-sigmas_pump(1,1); norm_spectral_pump=1/(sqrt(2*pi)*sigma_gauss_pump)*exp((-(sigmas_pump(:,1)lambda_0).^2)/(2*sigma_gauss_pump^2)); Spectral_Pump_pump=norm_spectral_pump*Pump_fluence*delta_lambda_pump; % Spectral pump pulse fluence [p_inv_out_pump,J_pulse_out_pump,p]=Sub_function_slice_fluence1(Spectral_Pu

mp_pump,N_pump_slices,...

pump_time,p_inv_start,sigmas_pump,tau_gain,h,c,N_gain_ion_density,length_crys
tal,T_losses);

ppp=p_inv_out_pump;

%% Define spectral seed pulse (here Gaussian Shaped, but could be any shape in principle)

Seed_energy=0.5*(10^-3); % Seed pulse energy is

seed_pulse_duration=1.3*(10^-9);% not really important... just used to correct inversion decay during pulse amplification,

% which is neglegible typically. Value here defined analogous to the value of the pumping time

% because then same subfunctions can be used for the pumping and for the amplification process.

 $F_seed_Seed_energy/(radius_laser_and_pump_mode^{2*pi}); \ \% \ Calculate \ pulse \ fluence$

FWHM_Gauss_seed=0.2*10^-9; % m

sigma_gauss=FWHM_Gauss_seed/2.35; % nm

%sigma_gauss=FWHM_Gauss_seed; % nm

lambda_0=288.5*10^-9; % m

delta_lambda_seed=sigmas_seed(2,1)-sigmas_seed(1,1);

norm_spectral_seed=1/(sqrt(2*pi)*sigma_gauss)*exp((-(sigmas_seed(:,1)-

lambda_0).^2)/(2*sigma_gauss^2));

J_pulse_in=norm_spectral_seed*F_seed*delta_lambda_seed; % Spectral seed pulse that is amplified during burst

J_seed_spectrum_normalized=J_pulse_in/max(J_pulse_in);

%% Simulation of pulse amplification (in loop repeated for Number_of_RT): FWHM=[];

for j=1:Number_of_single_passes

[p_inv_out_seed(j),J_pulse_out(:,j)]=Sub_function_slice_fluence(J_pulse_in,N_see d_slices,...

seed_pulse_duration,ppp,sigmas_seed,tau_gain,h,c,N_gain_ion_density,...
length amply(j),T losses);

J_pulse_in=J_pulse_out(:,j);

```
E_pulse_energy(j)=sum(J_pulse_out(:,j),1)*(radius_laser_and_pump_mode^2*pi);
p_inv_out_pump(j+1)=p_inv_out_seed(j);
```

J_spectrum_after_each_single_pass(j,:)=J_pulse_in/max(J_pulse_in);

%% FWHM spectrum

z11=J_spectrum_after_each_single_pass(j,:); % Cuong do pho

x01=sigmas_seed(:,1)*10^9; % buoc song khao sat

```
for w = 1:length(z11)
```

if z11(w)>=0.5

xxx5=x01(w);

ZZ1=z11(w);

buocsongphattrai=xxx5; % Diem phia ben trai

```
break; %ngat
```

end end

```
for w=1:length(z11)
    if z_{11(w)} <= 0.5 \& x_{01(w)} > x_{xx5}
      xxx6=x01(w);
       ZZ2=z11(w);
      buocsongphatphai=xxx6; % Diem phia ben phai
      break:
    end
  end
    FWHM_PHO=(buocsongphatphai-buocsongphattrai);
    FWHM=[FWHM FWHM PHO];
end
E_out=[Seed_energy E_pulse_energy]; % j nang luong laser ra
GG=[1 \text{ E out}(2)/\text{E out}(1) \text{ E out}(3)/\text{E out}(2) \text{ E out}(4)/\text{E out}(3) \text{ E out}(5)/\text{E out}(4)];
anpha=[ppp p_inv_out_seed];
function
                                         [p_1,Ji]
                                                                                 =
Sub_func_single_fluence_propagation(p_inv_start,J_pulse_in,sigmas,dt_slice,...
  tau_gain,h,c,N_gain_ion_density,length_crystal,T_losses)
% This function calculates the spectral amplification of each individual fluence slice.
wavelength=sigmas(:,1);
p_0=p_inv_start;
J_sat=h*c./(sigmas(:,1).*(sigmas(:,2)+sigmas(:,3))); % Equ. (5) in Paper
sigma_g=(p_0*(sigmas(:,2)+sigmas(:,3))-sigmas(:,3)); \% Equ. (3) in Paper
Gi=exp(sigma g*N gain ion density*length crystal); % Equ. (2) in Paper
Ji=J_sat*T_losses.*log(1+Gi.*(exp(J_pulse_in./J_sat)-1)); % Equ. (4) in Paper
spectral_delta_p=(Ji/T_losses-
J pulse in).*wavelength/(c*h*N gain ion density*length crystal);
% The delta_beta of Equ. (18) in the Paper, calculated for each spectral component.
% It sais how much each spectral component individually reduces the inversion.
delta p=sum(spectral delta p); % The sum of all spectral delta p results in the total
delta p
p 1=(p 0-delta p)*exp(-dt slice/tau gain);
% This calculates the inversion decay to correct the inversion during
% the considered pumping/amplification slice (Equ. (7) in my Paper).
%For amplification, this is completely neglegible, but for the pumping process is has
an effect.
end
C. Chương trình mô phỏng động học phát đồng thời 2 bước sóng
function dy=Cequenching2(t,y)
global Ipeak q1 q2 N1 sig L1 L2 Lc tau1 m tip n d;
  t1=10; %
```

```
tip1=tip^2; %
```

```
m1=m+1; m2=m1+1; m3=2*m+1;
```

```
c=(t-t1).^2;
Ib=Ipeak*exp(-4*log(2)*c/tip1); %
```

```
I=y(2:m1)+y(m2:m3);
```

```
dy1=Ib+(sum(sig(:,1).*I))*(N1-y(1))-(sum(sig(:,2).*I)+1/tau1).*y(1); %
  dy2=[]; dy3=[];
   for j=1:m
 a=sig(j,2).*y(1)-sig(j,1).*(N1-y(1));
   T1=2*(L1+Lc*(n-1))/30;
                                %ns, cm,
 dy2=[dy2;(2*Lc*a-q1(j)).*y(j+1)/T1+(1e-28)*y(1)]; \% cm/ps^2
   T2=2*(L2+Lc*(n-1))/30; %ns, cm,
 dy3=[dy3;(2*Lc*a-q2(j)).*y(j+m+1)/T2+(1e-28)*y(1)];
 end:
  dy=[dy1;dy2;dy3];
%%%%%%%%%%%
maxi1=[];maxi2=[];vachtt2=[];
Guongi=195.5 :0.1: 198.8;
  for ii=1:length(Guongi)
  Guong2=Guongi(ii);
                         %
sig111=[]
xx1=275:0.0001:320; %
yy1=spline(sig111(:,1),sig111(:,2),xx1); %
zz1=spline(sig111(:,1),sig111(:,3),xx1); %
sig11=[xx1' yy1' zz1'];
                                %
  Guong1=198.2635;
                       %
  vetlaser1=0.001;
                    %m
  LCT1=0.01;
                   %m
  anpha1=acosd(vetlaser1/LCT1); %
  vetlaser=LCT1/2;
                    %
  mm=1;
                 %
  dd=1/2400000:
                    %
  lamdatt1 = (dd/mm)*(sin(anpha1*pi/180)+sin(Guong1*pi/180));
                                                               %
  deta_lamda1
                                                                             =
sqrt(2)*(lamdatt1^2)./(pi*vetlaser)*((sin(anpha1*pi/180)+sin(Guong1*pi/180))); %
  lamdatt2=(dd/mm)*(sin(anpha1*pi/180)+sin(Guong2*pi/180));
                                                               %
  deta lamda2
                                                                             =
sqrt(2)*(lamdatt2^2)./(pi*vetlaser)*((sin(anpha1*pi/180)+sin(Guong2*pi/180))); %
  x01=lamdatt1*1e9;
  x011=x01-0.01;
  x012=x01+0.01; x013=deta_lamda1*1e9; x02=lamdatt2*1e9;
  x021=x02-0.01; x022=x02+0.01; x023=deta_lamda2*1e9;
  vachtt2=[vachtt2 x02];
x001=x011:0.0001:x012;
y001=spline(sig11(:,1),sig11(:,2),x001);
z001=spline(sig11(:,1),sig11(:,3),x001);
sig01=[x001' y001' z001'];
x002=x021:0.0001:x022;
y002=spline(sig11(:,1),sig11(:,2),x002);
z002=spline(sig11(:,1),sig11(:,3),x002);
sig02=[x002' y002' z002'];
```

```
sig1=[sig01; sig02]; %
[m,c1]=size(sig1);
m1=m+1;
sig2=sig1(:,1);
                         %
sig=1e-18*[sig1(:,2),sig1(:,3)]; %
clear sig1 sig11 sig111;
   xe1 = (sig2 - x01).^{2};
  r11=0.35*exp((-4*log(2)*xe1)/(x013).^2);
  r1=r11+1e-5;
                   %
   xe2=(sig2-x02).^{2};
   r22=0.35*exp((-4*log(2)*xe2)/(x023).^2);
   r2=r22+1e-5;
                    %
global Ipeak q1 q2 N1 sig Lk Lc tau1 m tip n d L1 L2;
N1=5e17; L1=10; L2=10+10*LCT1/2;
                                          Lc=1;
                                                     d=1;
                                                              tau1=25; n=1.41;
tip=7;
to=30;
           P=20E5;
                       anpha=3;
                                     l=Lc:
                                                  h=6.62606957E-34;
                                                                         c=3e10;
vetbom=0.05;
                  lambda=266E-7;
                                       %
Ipeak=P*lambda*(1-exp(-anpha*l))./(1E9*h*c*pi*l*vetbom.^2); %
                               q2 = -log(r2*r3);
  r3=0.6;
              q1 = -log(r1*r3);
  f=zeros(2*m+1,1);
  f1=[]; Ln=[]; y1=[]; x1=[];
for j=1:1:to;
 [x y]=ode45('Cequenching1',[j-1 j],f);
 f=y(end,:)';
 y_1 = [y_1; y]; x_1 = [x_1; x];
 clear x y;
end:
 a1=[x1(1);x1;x1(end)];
 INTP1=[];
for i=1:m
               % tich phan cuong do laser 1 theo thoi gian
  a2=[0;y1(:,i+1);0];
  INT1=polyarea(a1,a2);
  INTP1=[INTP1;INT1];
  clear a2;
end:
   figure(1);
 xx11=sig2(1,1):0.00001:sig2(m/2,1);
 yng1=spline(sig2(:,1),INTP1(:,1),xx11);
 tgo1=max(yng1);
 maxi1=[maxi1 tgo1];
 plot(xx11,yng1); hold on;
z11=yng1/tgo1; %
 xk1=xx11;
                %
  for w = 1:length(z11)
    if z11(w) >= 0.5
       xxx1=xk1(w);
       %ZZ1=z11(w);
```

```
buocsongphattrai1=xxx1; %
      break; %ngat
    end
  end
  for w=1:length(z11)
   if z11(w)<=0.5 & xk1(w)>xxx1
      xxx6=xk1(w);
      %ZZ2=z11(w);
      buocsongphatphai1=xxx6; %
      break;
   end
  end
     FWHM_PHO1=(buocsongphatphai1-buocsongphattrai1)*1000 %(pm)
%% Tien trinh pho thoi gian BCH1
 [mx1,nx1]=size(x1);
 INT11=[];
 for i=1:mx1
  a3=[sig2(1,1);sig2;sig2(end,1)];
  cc1=y1(i,2:m1);
  b=cc1';
  a4=[b(1,1);b;b(end,1)];
  IN=polyarea(a3,a4);
  INT11=[INT11;IN];
  a4=[];
  clear a3
end;
 tg1=max(INT11);
 %XX=x1;
 t1=10;
 tip1=tip.^2;
 c0=(x1-t1).^{2};
 YY = \exp(-4*\log(2)*c0/tip1);
%%
 INTP2=[];
 for i=1:m
              %
  a3=[0;y1(:,(i+1+m));0];
  INT=polyarea(a1,a3);
  INTP2=[INTP2;INT];
  clear a3;
end:
  %% figure 4...
  figure(4);
  xx22=sig2(1+m/2,1):0.00001:sig2(m,1);
  yng2=spline(sig2(:,1),INTP2(:,1),xx22);
  tgo2=max(yng2);
  maxi2=[maxi2 tgo2];
  plot(xx22,yng2); hold on;
```

```
%%
 z12=yng2/tgo2; %
 xk2=xx22;
                %
  for w = 1:length(z12)
    if z_{12}(w) >= 0.5
      xxx2=xk2(w);
       %ZZ3=z12(w);
      buocsongphattrai2=xxx2; %
      break; %ngat
    end
  end
  for w=1:length(z12)
   if z_{12}(w) \le 0.5 \& x_{k2}(w) > x_{x2}
      xxx7=xk2(w);
       %ZZ4=z12(w);
      buocsongphatphai2=xxx7; %
      break;
   end
  end
     FWHM_PHO2=(buocsongphatphai2-buocsongphattrai2)*1000 %(pm)
%%
  INT22=[];
  h1=m1+1;
  h2=2*m+1:
for i=1:mx1
  a3 = [sig2(1,1); sig2; sig2(end,1)];
  cc2=y1(i,h1:h2);
  b=cc2';
  a5=[b(1,1);b;b(end,1)];
  INT=polyarea(a3,a5);
                         %
  INT22=[INT22;INT];
                          %
  a5=[];
end:
  end
D. Chương trình mô phỏng tán xạ góc của hạt sol khí
% The following text lists the Program to compute the Mie Efficiencies:
function result = Mie(m, x)
```

```
% Computation of Mie Efficiencies for given
```

```
% complex refractive-index ratio m=m'+im"
```

```
% and size parameter x=k0*a, where k0= wave number in ambient
```

```
% medium, a=sphere radius, using complex Mie Coefficients
```

```
% an and bn for n=1 to nmax,
```

```
% s. Bohren and Huffman (1983) BEWI:TDD122, p. 103,119-122,477.
```

```
% Result: m', m", x, efficiencies for extinction (qext),
```

```
% scattering (qsca), absorption (qabs), backscattering (qb),
```

```
% asymmetry parameter (asy=<costeta>) and (qratio=qb/qsca).
```

```
% Uses the function "Mie_abcd" for an and bn, for n=1 to nmax.
```

```
% C. Mätzler, May 2002.
if x==0% To avoid a singularity at x=0
result=[real(m) imag(m) 0 0 0 0 0 0 1.5];
elseif x>0 % This is the normal situation
nmax=round(2+x+4*x^{(1/3)});
n1=nmax-1;
n=(1:nmax);
cn=2*n+1;
c1n=n.*(n+2)./(n+1);
c2n=cn./n./(n+1);
x2=x*x:
f=mie_abcd(m,x);
anp=(real(f(1,:))); anpp=(imag(f(1,:)));
bnp=(real(f(2,:))); bnpp=(imag(f(2,:)));
g1(1:4,nmax)=[0; 0; 0; 0]; % displaced numbers used for
g1(1,1:n1)=anp(2:nmax); % asymmetry parameter, p. 120
g1(2,1:n1)=anpp(2:nmax);
g1(3,1:n1)=bnp(2:nmax);
g1(4,1:n1)=bnpp(2:nmax);
dn=cn.*(anp+bnp);
q=sum(dn);
qext=2*q/x2;
en=cn.*(anp.*anp+anpp.*anpp+bnp.*bnp+bnpp.*bnpp);
q=sum(en);
qsca=2*q/x2;
qabs=qext-qsca;
fn=(f(1,:)-f(2,:)).*cn;
gn=(-1).^n;
f(3,:)=fn.*gn;
q = sum(f(3,:));
qb=q*q'/x2;
asy1=c1n.*(anp.*g1(1,:)+anpp.*g1(2,:)+bnp.*g1(3,:)+bnpp.*g1(4,:));
asy2=c2n.*(anp.*bnp+anpp.*bnpp);
asy=4/x2*sum(asy1+asy2)/qsca;
qratio=qb/qsca;
result=[real(m) imag(m) x qext qsca qabs qb asy qratio];
end:
```

```
_____
```

%The following text lists the basic program to compute the Mie Coefficients an, bn, %cn, dn and to produce a matrix of nmax column vectors [an; bn; cn; dn]: function result = Mie_abcd(m, x)

```
% Computes a matrix of Mie coefficients, a_n, b_n, c_n, d_n,
```

```
% of orders n=1 to nmax, complex refractive index m=m'+im",
```

```
% and size parameter x=k0*a, where k0= wave number
```

```
% in the ambient medium, a=sphere radius;
```

```
% p. 100, 477 in Bohren and Huffman (1983) BEWI:TDD122
```

```
% C. Mätzler, June 2002
```

```
nmax=round(2+x+4*x^{(1/3)});
n=(1:nmax); nu = (n+0.5); z=m.*x; m2=m.*m;
sqx = sqrt(0.5*pi./x); sqz = sqrt(0.5*pi./z);
bx = besselj(nu, x).*sqx;
bz = besseli(nu, z).*sqz;
yx = bessely(nu, x).*sqx;
hx = bx + i^*yx;
b1x = [sin(x)/x, bx(1:nmax-1)];
b1z = [sin(z)/z, bz(1:nmax-1)];
y_{1x}=[-\cos(x)/x, y_{x}(1:nmax-1)];
h1x = b1x + i*y1x;
ax = x.*b1x-n.*bx;
az = z.*b1z-n.*bz;
ahx = x.*h1x-n.*hx:
an = (m2.*bz.*ax-bx.*az)./(m2.*bz.*ahx-hx.*az);
bn = (bz.*ax-bx.*az)./(bz.*ahx-hx.*az);
cn = (bx.*ahx-hx.*ax)./(bz.*ahx-hx.*az);
dn = m.*(bx.*ahx-hx.*ax)./(m2.*bz.*ahx-hx.*az);
result=[an; bn; cn; dn];
```

%The following text lists the program to compute the absorption efficiency %Equation (9):

```
function result = Mie_{abs}(m, x)
```

```
% Computation of the Absorption Efficiency Qabs
```

```
% of a sphere of size parameter x,
```

```
% complex refractive index m=m'+im",
```

```
% based on nj internal radial electric field values
```

```
% to be computed with Mie_Esquare(nj,m,x)
```

```
% Ref. Bohren and Huffman (1983) BEWI:TDD122,
```

```
% and my own notes on this topic;
```

```
% k0=2*pi./wavelength;
```

```
% x=k0.*radius;
```

```
% C. Mätzler, May 2002
```

```
n_{j}=5*round(2+x+4*x.^{(1/3)})+160;
```

```
e2=imag(m.*m);
```

```
dx = x/nj;
```

```
x2=x.*x;
```

```
nj1=nj+1;
```

```
x_j = (0:dx:x);
```

```
en=Mie_Esquare(m,x,nj);
```

```
en1=0.5*en(nj1).*x2; % End-Term correction in integral
```

```
enx=en*(xj.*xj)'-en1; % Trapezoidal radial integration
```

```
inte=dx.*enx;
```

```
Qabs=4.*e2.*inte./x2;
```

```
result=Qabs;
```

```
-----
```

% The following text lists the program to compute and plot the (?, ?) averaged % absolute-square E-field as a function of x'=rk (for r<0<a): function result = Mie_Esquare(m, x, nj) % Computation of nj+1 equally spaced values within (0,x)% of the mean-absolute-square internal % electric field of a sphere of size parameter x, % complex refractive index m=m'+im", % where the averaging is done over teta and phi, % with unit-amplitude incident field; % Ref. Bohren and Huffman (1983) BEWI:TDD122, % and my own notes on this topic; % k0=2*pi./wavelength; % x=k0.*radius; % C. Mätzler, May 2002 $nmax=round(2+x+4*x^{(1/3)});$ n=(1:nmax); nu =(n+0.5);m1=real(m); m2=imag(m);abcd=Mie_abcd(m,x); cn=abcd(3.:); dn=abcd(4,:); $cn2=abs(cn).^{2};$ $dn2=abs(dn).^{2};$ dx = x/nj;for j=1:nj, xj=dx.*j; z=m.*xj;sqz = sqrt(0.5*pi./z);bz = besseli(nu, z).*sqz; % This is in(z) $bz2=(abs(bz)).^2;$ b1z=[sin(z)/z, bz(1:nmax-1)]; % Note that sin(z)/z=j0(z)az = b1z-n.*bz./z; $az2=(abs(az)).^2;$ z2=(abs(z)).^2; n1 = n.*(n+1);n2 = 2.*(2.*n+1);mn=real(bz2.*n2); nn1=az2; nn2=bz2.*n1./z2; nn=n2.*real(nn1+nn2); en(j)=0.25*(cn2*mn'+dn2*nn');end: xxj=[0:dx:xj]; een=[en(1) en];plot(xxj,een); legend('Radial Dependence of $(abs(E))^{2}$ ') title(sprintf('Squared Amplitude E Field in a Sphere, m=% g+% gi x=% g', m1, m2, x)) xlabel('r k') result=een;

```
clear all;
m1 = 1.327; % real refractive index
m2 = 2.89*10^{-6}; % imagine refractive index
m = m1 + 1i*m2;
r = 100; % radius of a particle
d = 2*r; % diameter of a particle
wavelen = 1064; % laser wavelength
x = pi*d/wavelen; \% size parameter
x^{2} = x^{*}x;
O = Mie(m,x);
den = (pi*x2*Q(5));
np = 360;
nx = (1:np);
dt = 2*pi/(np-1);
theta = (nx-1).*dt;
Sp = zeros(1,np);
Tot = 0:
for j = 1:np
  u = cos(theta(j));
  a = mie_S12(m,x,u);
  SL = a(1)*a(1)';
  SR = a(2)*a(2)';
  Sp(j) = (SL + SR)/den;
end
1 = Sp(1);
for j = 1:np
 if l>Sp(j)
    l=Sp(j);
    n=j;
  end
end
Sp = Sp/l;
k = 10/Sp(n);
Sp = k*Sp; % For log scale to be positive
Sp = log10(Sp); \% Log scale
polar(theta,Sp)
title(sprintf('Mie angular scattering: m=%g+%gi, x=%g',m1,m2,round(x,2)));
_____
```

% The following text lists the program to compute a matrix of ?n and ?n % functions for n=1 to nmax: function result=Mie_pt(u,nmax) % pi_n and tau_n, -1 <= u= cos? <= 1, n1 integer from 1 to nmax

```
% angular functions used in Mie Theory
% Bohren and Huffman (1983), p. 94 - 95
p(1)=1;
t(1)=u;
p(2)=3*u;
t(2)=3*\cos(2*a\cos(u));
for n1=3:nmax,
p1=(2*n1-1)./(n1-1).*p(n1-1).*u;
p2=n1./(n1-1).*p(n1-2);
p(n1)=p1-p2;
t1=n1*u.*p(n1);
t2=(n1+1).*p(n1-1);
t(n1)=t1-t2;
end;
result=[p;t];
_____
clear all
clear all;
format long;
%Mie intensity
m=2.28 + 0.59i;
m1=real(m);
m2=imag(m);
r=0.1:0.01:3; % the radius of the sphere
nsteps=length(r);
wavelen=[280 290 300];
wavelen=wavelen*10^-3;
lw=length(wavelen);
qb=zeros(nsteps,1);
qbs=zeros(nsteps,lw);
for i=1:1w
  for j=1:nsteps
     x=2*pi*r(j)/wavelen(i); % the size parameter
    nmax=round(2+x+4*x^{(1/3)});
     n1 =nmax-1;
    n=(1:nmax);
    cn=2*n+1;
     c1n=n.*(n+2)./(n+1);
     c2n=cn./n./(n+1);
     x2=x*x;
    f=Mie_abcd(m,x);
    fn=(f(1,:)-f(2,:)).*cn;
     gn=(-1).^n;
    f(3,:)=fn.*gn;
     q = sum(f(3,:));
    qb(j)=q^{q'/x2};
```

116

```
end

qbs(:,i)=smooth(qb(:,1),20);

end

plot(r,qbs)

legend('280','290','300','310')

title(sprintf('Amorphous carbon: m=%g+%gi',m1,m2));

xlabel('Radius')
```

```
%The following text lists the program to compute the two complex
% scattering amplitudes S1 and S2:
function result = Mie_S12(m, x, u)
% Computation of Mie Scattering functions S1 and S2
% for complex refractive index m=m'+im",
% size parameter x=k0*a, and u=cos(scattering angle),
% where k0=vacuum wave number, a=sphere radius;
% s. p. 111-114, Bohren and Huffman (1983) BEWI:TDD122
% C. Mätzler, May 2002
nmax=round(2+x+4*x^{(1/3)});
abcd=Mie_abcd(m,x);
an=abcd(1,:);
bn=abcd(2,:);
pt=Mie_pt(u,nmax);
pin = pt(1,:);
tin=pt(2,:);
n=(1:nmax);
n2=(2*n+1)./(n.*(n+1));
pin=n2.*pin;
tin=n2.*tin;
S1=(an*pin'+bn*tin');
S2=(an*tin'+bn*pin');
result=[S1;S2];
```

```
-----
```

```
function result = Mie_tetascan(m, x, nsteps)
% Computation and plot of Mie Power Scattering function for given
% complex refractive-index ratio m=m'+im", size parameters x=k0*a,
% according to Bohren and Huffman (1983) BEWI:TDD122
% C. Mätzler, May 2002.
nsteps=nsteps;
m1=real(m); m2=imag(m);
nx=(1:nsteps); dteta=pi/(nsteps-1);
teta=(nx-1).*dteta;
for j = 1:nsteps,
u=cos(teta(j));
a(:,j)=Mie_S12(m,x,u);
SL(j)= real(a(1,j)'*a(1,j));
```

```
SR(j) = real(a(2,j)'*a(2,j));
end:
y=[teta teta+pi;SL SR(nsteps:-1:1)]';
polar(y(:,1),y(:,2))
title(sprintf('Mie angular scattering: m=%g+%gi, x=%g',m1,m2,x));
xlabel('Scattering Angle')
result=y;
_____
m=2.28 + 0.59i;
m1=real(m);
m2=imag(m);
wavelen=280:0.1:310;
wavelen=wavelen.*10^-3;
nw=length(wavelen);
r=[2.5 5 10];
nr=length(r);
qb=zeros(nw,1);
qbs=zeros(nw,nr);
for i=1:nr
  for j=1:nw
    x=2*pi*r(i)/wavelen(j);
    nmax=round(2+x+4*x^{(1/3)});
    n1=nmax-1;
    n=(1:nmax);
    cn=2*n+1;
    c1n=n.*(n+2)./(n+1);
    c2n=cn./n./(n+1);
    x2=x*x:
    f=Mie_abcd(m,x);
    fn=(f(1,:)-f(2,:)).*cn;
    gn=(-1).^n;
    f(3,:)=fn.*gn;
    q=sum(f(3,:));
    qb(j)=q*q'/x2;
  end
  qbs(:,i)=qb(:,1);
end
wavelen=wavelen.*10^3;
plot(wavelen,qbs)
legend('r = 2.5', 'r = 5.0', 'r = 10.0')
title(sprintf('Silicon dioxide SiO_2: m=%g+%gi',m1,m2));
xlabel('Wavelength (nm)')
```

%The following text lists the program to compute the a matrix of Mie % efficiencies and to plot them as a function of x:

```
function result = Mie_xscan(m, nsteps, dx)
% Computation and plot of Mie Efficiencies for given
% complex refractive-index ratio m=m'+im"
% and range of size parameters x=k0*a,
% starting at x=0 with nsteps increments of dx
% a=sphere radius, using complex Mie coefficients an and bn
% according to Bohren and Huffman (1983) BEWI:TDD122
% result: m', m", x, efficiencies for extinction (qext),
% scattering (qsca), absorption (qabs), backscattering (qb),
% gratio=qb/qsca and asymmetry parameter (asy=<costeta>).
% C. Mätzler, May 2002.
nx=(1:nsteps)';
x=(nx-1)^*dx;
for j = 1:nsteps
a(j,:)=Mie(m,x(j));
end;
output_parameters = 'Real(m), Imag(m), x, Qext, Qsca, Qabs, Qb, <costeta>,
Qb/Qsca'
m1=real(m);m2=imag(m);
plot(a(:,3),a(:,4:9)) % plotting the results
legend('Qext','Qsca','Qabs','Qb','<costeta>','Qb/Qsca')
title(sprintf('Mie Efficiencies, m=%g+%gi',m1,m2))
xlabel('x')
result=a;
```