

ВЛИЯНИЕ ЧАСТОТЫ ВОЗБУЖДЕНИЯ НА ГЕНЕРАЦИОННЫЕ ХАРАКТЕРИСТИКИ ЛАЗЕРОВ НА КРАСИТЕЛЯХ С КОГЕРЕНТНОЙ НАКАЧКОЙ

Введение

Одной из важнейших характеристик лазеров на красителях (ЛК) с монохроматическим возбуждением является эффективность (КПД) преобразования энергии накачки в энергию генерации, поскольку эти ЛК фактически представляют собой лазеры-преобразователи, способные трансформировать излучение лазеров с фиксированной длиной волны в плавно переформируемое лазерное излучение в широком диапазоне видимой и ближней ИК-области оптического спектра. Хорошо известно, что КПД генерации ЛК с монохроматической накачкой существенно зависит от частоты возбуждающего излучения [1]. При этом распространенными являются возникшие изначально упрощенные представления о характере этой зависимости, когда эффективность генерации однозначно связывают с эффективностью поглощения излучения накачки. Поскольку эффективность поглощения определяется величиной коэффициента поглощения среды $\chi(\nu) = N \cdot \sigma_{ab}(\nu)$, где N – концентрация молекул, а $\sigma_{ab}(\nu)$ – сечение поглощения молекулы красителя на частоте ν , то при таком подходе максимальной эффективности преобразования следует ожидать при накачке в максимум полосы поглощения красителя. Однако экспериментальные исследования зависимостей эффективности преобразования от длины волны возбуждающего света, выполненные с использованием лазеров накачки разного типа, выявили, что эти зависимости имеют более сложный характер и далеко не всегда максимальная эффективность достигается при накачке на длине волны максимума поглощения красителя [2]. Наиболее показательными в этом плане являются результаты, представленные в работах [3, 4], в которых исследовано влияние спектрального состава излучения накачки на эффективность генерации этанольных растворов ряда красителей различных классов при возбуждении импульсами микросекундной длительности. При измерении зависимостей КПД генерации от частоты накачки было обнаружено наличие локального минимума эффективности преобразования вблизи максимума полосы поглощения красителя. Впоследствии такой же эффект наблюдался и при исследовании влияния спектрального состава излучения накачки на КПД генерации твердых матриц на основе активированных красителями композитов “нанопористое стекло-полимер” [5]. Эти результаты настолько сильно отличались от тех, которые можно было ожидать исходя из традиционных представлений, что полученные зависимости были названы “аномальными”. Для объяснения причин обнаруженного эффекта потребовался дополнительный анализ, чему и посвящена данная работа.

Экспериментальные результаты

Характерный пример “аномальной” зависимости приведен на рис.1, а, где показана эволюция КПД преобразования (η) ЛК на этанольном растворе родамина 6G при изменении длины волны излучения накачки (λ_p). Здесь же приведен спектральный контур полосы поглощения родамина 6G (σ_{ab}) в относительных единицах. В ходе эксперимента регистрировалась также длина волны генерации λ_e лазера преобразователя. Зависимость центральной длины волны спектральной полосы генерации от длины волны накачки $\lambda_e(\lambda_p)$ приведена на рис.1, б. Источником возбуждения служил ЖЛК на растворах красителей, смена которых позволяла изменять длину волны накачки в пределах всей полосы поглощения родамина 6G. Длительность импульсов накачки составляла ~ 2 мкс по половине интенсивности. Энергия накачки на каждой из длин волн сохранялась постоянной. Возбуждение лазера-

преобразователя осуществлялось по квазипродольной схеме, под углом $5 - 7^\circ$ к оси его резонатора. Сам резонатор был образован плоским зеркалом с коэффициентом отражения $R \approx 1,0$ и стопой из трех плоско-параллельных пластин с коэффициентом отражения $R_{ближ} \approx 0,2$. Толщина кюветы с родамином 6G составляла 5 мм. Концентрация красителя в активной среде лазера-преобразователя подбиралась такой, чтобы для каждой из длин волн накачки сохранялся одинаковый коэффициент поглощения $\chi(\nu) = const$.

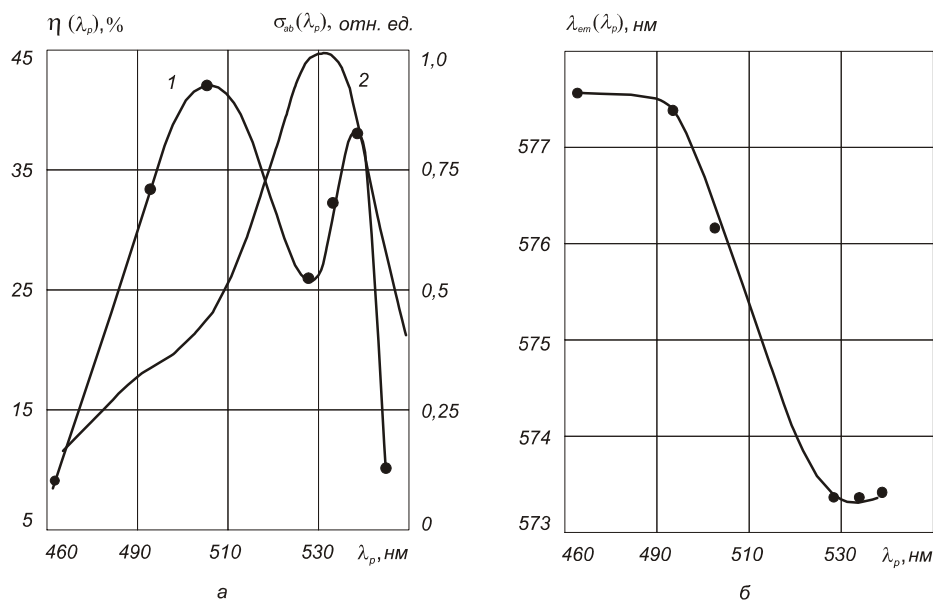


Рис. 1

Видно, что в условиях данного эксперимента наблюдается падение КПД по мере приближения λ_p к длине волны максимума полосы поглощения, сопровождающееся коротковолновым сдвигом спектра генерации лазера-преобразователя. Это свидетельствует о том, что изменение длины волны накачки влияет как на величину коэффициента усиления среды, так и на форму его спектрального контура. Поэтому для объяснения причин характера зависимости КПД от длины волны возбуждения необходимо проанализировать особенности процесса генерации ЛК с учетом тех факторов, которые оказывают влияние на эффективность генерации при изменении спектрального состава излучения накачки.

Теоретическая модель

Поставленная задача решалась путем теоретического анализа процесса генерации ЛК с учетом изменение формы и геометрических размеров генерирующей области, формируемой неравномерно распределенным по объему излучением накачки. Предположим, что на поверхность активного элемента толщиной d падает пучок излучения с мощностью I , при этом пучок накачки имеет круглое сечение, в котором плотность мощности $P(\rho, \theta)$ обладает Гауссовым распределением:

$$P(\rho, \theta) = P_{max} \exp\left[-4 \ln 2 (\rho / \Delta\rho)^2\right], \quad (1)$$

где ρ и θ – полярные координаты, P_{max} – плотность мощности на оси пучка, $\Delta\rho$ – полуширина распределения. Тогда нетрудно найти, что

$$P_{max} = 4 \ln 2 I / \pi \Delta\rho^2. \quad (2)$$

Если накачка не вызывает просветления генерирующего слоя, то распределение плотности мощности накачки на частоте ν_p внутри активной среды на расстоянии z от поверхности элемента описывается функцией

$$p(z, \rho, \theta, \nu_p) = P(\rho, \theta) \exp[-\chi(\nu_p) \cdot z]. \quad (3)$$

Форма и размер зоны генерации формируются в результате поглощения излучения накачки с неравномерным распределением вида (3). Будем полагать, что эту зону можно представить в виде совокупности элементарных областей с поперечным сечением $ds = \rho d\rho d\theta$ и длиной $l(\rho, \theta, \nu_p, \nu_{em})$, в которых выполняется пороговое условие

$$k_a = K, \quad (4)$$

где $k_a(\rho, \theta, \nu_{em}, \nu_p)$ и $K(\rho, \theta, \nu_p)$ – средние по длине резонатора коэффициенты усиления и потерь соответственно. В дальнейшем, ввиду симметрии задачи, зависимость от координаты θ можно не рассматривать.

Если молекулу красителя смоделировать упрощенной схемой двух уширенных синглетных электронных уровней: основного S_0 и первого возбужденного S_1 с населенностями $N_0(\rho, \nu_p, \nu_{em})$ и $N_1(\rho, \nu_p, \nu_{em})$ соответственно, то

$$k_a = N_1 \sigma_{em}(\nu) - N_0 \sigma_{ab}(\nu), \quad (5)$$

$$K = 1/2l \cdot \ln(R_1 R_2)^{-1}, \quad (6)$$

где $\sigma_{em}(\nu)$ – сечение вынужденного излучения молекулы красителя, R_1 и R_2 – коэффициенты отражения зеркал резонатора. В дальнейшем будем полагать, что $R_1 = 1$.

В стационарном приближении, хорошо выполняющемся для лазеров с микросекундной длительностью импульсов, баланс частиц в каждой из элементарных областей зоны генерации может быть описан уравнениями

$$N_0 \bar{p} \cdot \sigma_{ab}(\nu_p) / h\nu_p - N_1 \tau_s^{-1} - c\varphi \cdot k = 0, \quad (7)$$

$$N_1 + N_0 = N, \quad (8)$$

где τ_s – время жизни возбужденного состояния, ν_p – частота возбуждения, ν_{em} – частота генерации, $\bar{p}(\rho, \nu_p, \nu_{em})$ – средняя по элементарной области плотность мощности накачки, $\varphi(\rho, \nu_p)$ – плотность фотонов генерации в этой области, h – постоянная Планка, c – скорость света. При этом стационарная населенность возбужденного состояния определяется условием (4):

$$N_1 = [K + N\sigma_{ab}(\nu_{em})] / [\sigma_{em}(\nu_{em}) + \sigma_{ab}(\nu_{em})]. \quad (9)$$

Среднюю плотность мощности накачки определим как $\bar{p} \equiv \frac{1}{l} \int_0^l p dz$. Тогда, с учетом (3), получим

$$\bar{p} = \frac{1}{\chi(\nu_p) \cdot l} P_{\max} f(\rho) \cdot \left[1 - e^{-\chi(\nu_p) \cdot l} \right]. \quad (10)$$

Решая систему уравнений (7) – (9), нетрудно получить формулы для оценки пороговой плотности мощности накачки $p_{th}(\rho, \nu_p, \nu_{em})$ и мощности генерации $w_{em}(\rho, \nu_p, \nu_{em}) = c\varphi \cdot K \cdot l \cdot dS \cdot h\nu_{em}$:

$$p_{th} = h\nu_p \tau_s^{-1} \left\{ \chi(\nu_p) / N_1 - \sigma_{ab}(\nu_p) \right\}^{-1}, \quad (11)$$

$$w_{em} = l \cdot d S \tau_s^{-1} N_1 \left[\bar{p} / p_{th} - 1 \right] \cdot h\nu_{em}. \quad (12)$$

Очевидно, что общая мощность лазерного излучения $W_{em}(\nu_p, \nu_{em})$ может быть найдена численным интегрированием соотношения (12) по площади генерирующей зоны:

$$W_{em} = 2\pi \cdot h\nu_{em} \tau_s^{-1} \int_0^{r_0} w_{em} \cdot \rho d\rho, \quad (13)$$

где $r_0(\nu_p, \nu_{em})$ – радиус зоны генерации на облучаемой грани активного элемента.

Далее необходимо получить соотношения для определения входящих в уравнения (5) – (13) параметров ν_{em} , l и r_0 .

Частота генерации ν_{em} и длина зоны генерации $l(\rho, \nu_p, \nu_{em})$ являются взаимозависящими величинами. Поэтому для их вычисления необходимо получить и совместно решить соответствующие уравнения.

В бесконечно длинной активной среде длина локальной области генерирующей зоны $L(\rho, \nu_p, \nu_{em})$ определяется условием

$$p(z, \rho, \nu_p, \nu_{em}) = p_{th}(\rho, \nu_p, \nu_{em}). \quad (14)$$

Подставляя в равенство (14) выражения (3) и (11) и полагая, что $\sigma_{ab}(\nu_{em}) \ll \sigma_{em}(\nu_{em})$, получаем трансцендентное уравнение относительно $\chi(\nu_p)L$:

$$b(\nu_p) f(\rho) \left[a(\nu_p, \nu_{em}) \chi(\nu_p)L - 1 \right] e^{-a(\nu_p, \nu_{em}) \chi(\nu_p)L} = 1, \quad (15)$$

где

$$a(\nu_p, \nu_{em}) = \sigma_{em}(\nu_{em}) / 0,5 \ln(R_1 R_2)^{-1} \sigma_{ab}(\nu_p),$$

$$b(\nu_p) = P_{\max} \sigma_{ab}(\nu_p) \tau_s / h\nu_p,$$

$$f(\rho) = \exp \left[-4 \ln 2 (\rho / \Delta\rho)^2 \right].$$

Логарифмирование обеих частей уравнения (15) и использование разложения вида $\ln(x) \approx 2(x-1)/(x+1)$ позволяют свести это уравнение к квадратному, одно из решений которого дает аналитическую формулу для приближенной оценки $L(\rho, \nu_p, \nu_{em})$:

$$L = \frac{1}{2\chi(\nu_p)} \left\{ \ln [b(\nu_p) f(\rho)] + 2 + \sqrt{[\ln [b(\nu_p) f(\rho)] + 2]^2 - \frac{16}{a}} \right\}. \quad (16)$$

Областью определения функции (16) являются значения координаты $|\rho| \leq r_0(\nu_p, \nu_{em})$, где

$$r_0(\nu_p, \nu_{em}) = \frac{\Delta\rho}{2\sqrt{\ln 2}} \sqrt{2 + \ln [b(\nu_p)] - 4 / \sqrt{a(\nu_p, \nu_{em})}}. \quad (17)$$

Это означает, что $r_0(\nu_p, \nu_{em})$ есть радиус зоны генерации на облучаемой поверхности активного элемента. В активной среде конечной толщины d может возникнуть ситуация, ко-

где $L(\rho, \nu_p, \nu_{em}) > d$. Поэтому в общем случае длину локальной зоны генерации $l(\rho, \nu_p, \nu_{em})$ следует вычислять как

$$l = L \quad \text{при } L(\rho, \nu_p, \nu_{em}) < d$$

$$l = d \quad \text{при } L \geq d$$
(18)

Определяемая условием (18) функция $l(\rho, \nu_p, \nu_{em})$, по сути, описывает форму поверхности генерирующей зоны внутри активного слоя и позволяет вычислить ее объем $V(\nu_p, \nu_{em}) = 2\pi \int_0^{r_0} l \cdot d\rho$.

Частота стационарной генерации ν_{em} определяется условием

$$dk(\rho, \nu) / d\nu = 0.$$
(19)

Если частотный контур $\sigma_{em}(\nu)$ аппроксимировать функцией Гаусса $\sigma_{em}(\nu) = \sigma_{em}(\nu_f) \exp[-2(\nu - \nu_f)^2 / \Delta\nu^2]$, а связь между $\sigma_{em}(\nu)$ и $\sigma_{ab}(\nu)$ задать как $\sigma_{ab}(\nu) = \sigma_{em}(\nu) \exp[h(\nu - \nu_{el}) / kT]$, то с учетом (9) уравнение (19) можно преобразовать к виду

$$\sigma_{ab}(\nu_{em}) \frac{h}{kT} \cdot \frac{\Delta\nu^2}{4(\nu_f - \nu_{em})} = \frac{K}{N}.$$
(20)

Здесь ν_f – частота максимума люминесценции, ν_{el} – частота чисто электронного перехода, $\Delta\nu$ – полуширина контура люминесценции, k – постоянная Больцмана, T – температура.

В диапазоне генерации ЛК зависимость $\sigma_{ab}(\nu)$ достаточно хорошо может быть описана функцией

$$\sigma_{ab}(\nu) = \sigma_{ab}(\nu_f) \left[1 + \alpha \left((\nu_f - \nu) / \Delta\nu \right)^2 \right]^{-1},$$
(21)

где α – коэффициент. Для родамина 6G $\alpha = 170$. Такая аппроксимация $\sigma_{ab}(\nu)$ позволяет получить аналитическое решение уравнения (18) относительно ν_{em} :

$$\nu_{em}(\rho, \nu_p) = \nu_f - \Delta\nu \left[\frac{N\sigma_{ab}(\nu_f) \cdot l}{2 \ln(R_1 R_2)^{-1}} \frac{h\Delta\nu}{kT} \right]^{\frac{1}{3}}.$$
(22)

Уравнения (18) и (22) составляют искомую систему для нахождения частоты генерации и длины генерирующей зоны. Это можно сделать путем численного решения данной системы. Очевидно, что разным локальным областям зоны генерации соответствуют разные частоты генерации, совокупность которых образует спектральную полосу излучения. Для упрощения дальнейших расчетов целесообразно ограничиться вычислением частоты генерации осевой зоны среды, полагая, что это есть средняя частота генерации.

Результаты расчетов и их обсуждение

Рассчитаем зависимости генерационных характеристик лазера на Родамине 6G от частоты возбуждающего излучения. Среду будем характеризовать следующими значениями спектроскопических параметров: $\nu_f = 5,35 \cdot 10^{14} \text{Гц}$, $\nu_{el} = 5,496 \cdot 10^{14} \text{Гц}$, $\Delta\nu = 6 \cdot 10^{13} \text{Гц}$, $\sigma_{em}(\nu_f) = 1,85 \cdot 10^{-16} \text{см}^2$, $\tau_s = 7,4 \cdot 10^{-9} \text{с}$. Для вычисления $\chi(\nu)$ реальный спектр первой полосы поглощения Родамина 6G $\sigma_{ab}(\nu)$ аппроксимировался аналитической функцией с мак-

симумом $\sigma_{ab}(5,66 \cdot 10^{14} \text{ Гц}) = 2,76 \cdot 10^{-16} \text{ см}^2$. Будем также полагать, что для всех значений ν_p мощность накачки I и коэффициент поглощения среды $\chi(\nu_p)$ сохраняются постоянными. $I = 100 \text{ кВт}$, $\chi = 18 \text{ см}^{-1}$, а $\Delta\rho = 0,12$. Результаты расчетов для наглядности представим в виде зависимостей от длины волны накачки $\lambda_p = c/\nu_p$.

Сохранение постоянной оптической плотности активной среды для разных длин волн накачки достигается изменением концентрации красителя. Тогда $N(\nu_p) = \chi/\sigma_{ab}(\nu_p)$. Как известно, изменение концентрации красителя с частично перекрывающимися спектральными полосами поглощения и люминесценции обуславливает трансформацию насыщенного контура усиления активной среды ЛК и приводит к изменению длины волны излучения лазера и пороговой степени инверсии среды [6]. Смещение длины волны генерации λ_{em} при изменении длины волны накачки λ_p демонстрируют представленные на рис. 2, а зависимости $\lambda_{em}(\lambda_p)$, рассчитанные для трех значений коэффициента отражения выходного зеркала R_2 : 1 – $R_2 = 0,8$; 2 – $R_2 = 0,5$; 3 – $R_2 = 0,2$. Для резонаторов с разным уровнем потерь эти зависимости имеют одинаковый характер. По мере приближения λ_p к максимуму полосы поглощения красителя λ_{ab}^{\max} и, соответственно, при уменьшении концентрации N , длина волны генерации смещается в коротковолновую сторону. При этом уменьшение добротности резонатора предсказуемо приводит к общему коротковолновому сдвигу зависимостей $\lambda_{em}(\lambda_p)$.

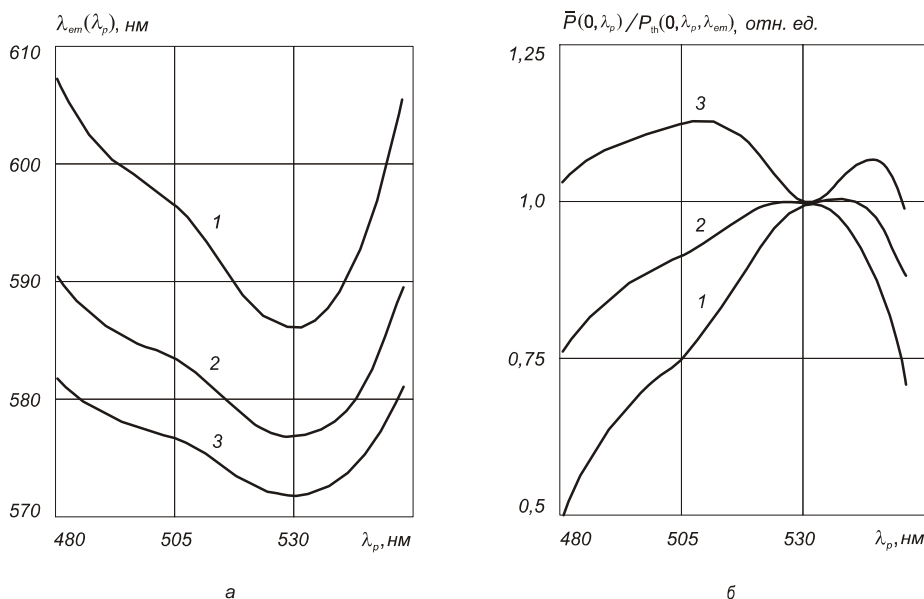


Рис. 2

Изменение пороговых условий наиболее полно характеризуется отношением плотности мощности накачки к пороговой плотности мощности. Зависимости $p_{th}(0, \nu_p, \nu_{em})/\bar{p}(0, \nu_p)$ в осевой области зоны генерации ($\rho = 0$) для трех значений коэффициента отражения выходного зеркала $R_2 = 0,8$ (1), $R_2 = 0,5$ (2) и $R_2 = 0,2$ (3) приведены на рис. 2, б. Для наглядности каждая из зависимостей нормирована на свое значение при $\lambda_p = \lambda_{ab}^{\max}$. Очевидно, что в низкодобротном резонаторе уменьшение концентрации N при приближении λ_p к λ_{ab}^{\max} вызывает более значительное возрастание порога генерации, чем в резонаторах с малыми потерями. Это приводит к тому, что в резонаторе с большими потерями степень превышения плотности

мощности накачки над пороговой при $\lambda_p \rightarrow \lambda_{ab}^{\max}$ начинает снижаться, достигая минимума при $\lambda_p = \lambda_{ab}^{\max}$ (кривая 3). С повышением добротности резонатора спад отношения $P_{th}(0, \nu_p, \nu_{em}) / \bar{P}(0, \nu_p)$ в окрестности λ_{ab}^{\max} уменьшается, а в высокодобротном резонаторе при $\lambda_p = \lambda_{ab}^{\max}$ превышение накачки над порогом становится максимальным.

Из данных графиков следует, что увеличение или уменьшение степени превышения плотности мощности накачки над пороговой соответственно приводит к увеличению или уменьшению генерирующего объема. Так, в высокодобротном резонаторе при $\lambda_p = \lambda_{ab}^{\max}$ генерирующий объем максимален, а в низкодобротном – минимален.

Порог генерации и объем генерирующей зоны в значительной мере определяют энергетические характеристики лазера. Именно совместным влиянием изменения этих параметров при перестройке длины волны накачки λ_p определяется характер зависимостей КПД преобразования ЛК η от λ_p . Соответствующие зависимости КПД генерации $\eta(\nu_p, \nu_{em}) = W(\nu_p, \nu_{em}) / I$, рассчитанные для трех значений коэффициента отражения выходного зеркала $R_2 = 0,8$ (1), $R_2 = 0,5$ (2) и $R_2 = 0,2$ (3), показаны на рис. 4.

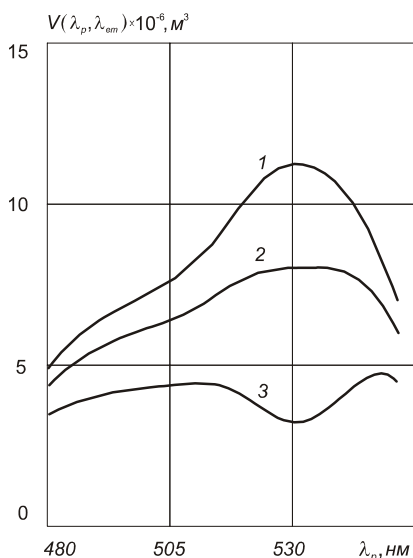


Рис. 3

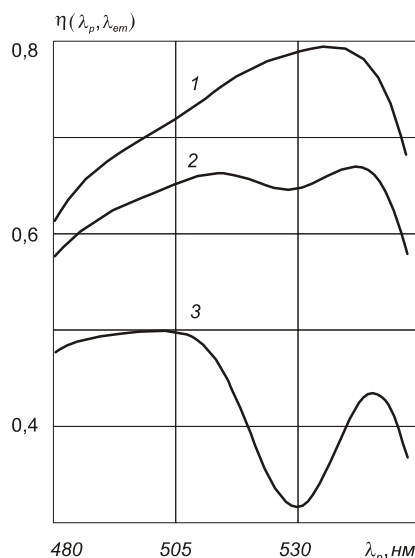


Рис. 4

Данные графики подтверждают сильное влияние добротности резонатора на характер зависимостей энергетических характеристик ЛК от длины волны накачки. Для низкодобротного резонатора ЛК ($R_2 = 0,2$) наблюдается ярко выраженный локальный минимум $\eta(\lambda_p)$ вблизи длины волны максимума спектра поглощения красителя λ_{ab}^{\max} . Увеличение добротности резонатора приводит к общему росту КПД генерации и к постепенному исчезновению локального минимума $\eta(\lambda_p)$ вблизи λ_{ab}^{\max} , так что при $R_2 = 0,8$ зависимость $\eta(\lambda_p)$ уже имеет глобальный максимум КПД, смещенный в длинноволновую сторону относительно λ_{ab}^{\max} . Необходимо отметить, что расчетные зависимости $\lambda_{em}(\lambda_p)$ и $\eta(\lambda_p)$ качественно согласуются с экспериментальными данными, приведенными на рис. 1. В частности, это касается нали-

чия резкого спада КПД преобразования при $R_2 = 0,2$ и коротковолнового смещения длины волны генерации при перестройке λ_p к максимуму полосы поглощения красителя.

Отличия теоретических и экспериментальных зависимостей наблюдаются лишь на коротковолновом и длинноволновом участках спектра поглощения красителя, где требуемая оптическая плотность среды обеспечивалась за счет очень большой концентрации красителя. Эти отличия обусловлены тем, что в теоретической модели не учитывались эффекты концентрационного тушения, возникающие в реальных средах при большой концентрации активных молекул.

Выводы

Таким образом, в работе проанализировано влияние частоты излучения накачки на генерационные характеристики продольно возбуждаемого ЛК. В основу анализа положена теоретическая модель, учитывающая зависимость геометрических размеров генерирующей зоны от пространственных и спектральных параметров возбуждающего излучения. Получены аналитические соотношения для расчета зависимостей основных параметров ЛК от длины волны накачки. На основании этих соотношений рассчитаны и проанализированы зависимости длины волны генерации и КПД преобразования лазера на родамине 6G от длины волны возбуждения при постоянной оптической плотности активной среды. Показано, что характер этих зависимостей определяется изменением пороговой степени инверсии и длины волны излучения лазера вследствие изменения концентрации красителя с частично перекрывающимися спектральными полосами поглощения и люминесценции, а также изменением объема генерирующей зоны, определяемой пороговыми условиями. При этом степень влияния этих процессов на энергетические и спектральные характеристики ЛК существенно зависят от добротности резонатора. Расчеты показали, что резкое снижение КПД преобразования при накачке в максимум полосы поглощения красителя присуще ЛК с низкодобротным резонатором. Этот результат согласуется с экспериментальными данными, полученными именно для лазеров с большим пропусканием выходного зеркала резонатора.

Работа выполнена при поддержке Государственного фонда фундаментальных исследований Украины.

Список литературы: 1. *Методы* расчета оптических квантовых генераторов на органических красителях при монохроматическом возбуждении. Ч.1 / Под ред. Степанова Б.И. – Минск : Наука и техника, 1968. – 47с. 2. *Тихонов Е.А., Шнак М.Т.* Нелинейные оптические явления в органических соединениях. – Киев : Наук. думка, 1979. – 384с. 3. *Тарковский В.В., Курсак В.Ю., Ануфрик С.С.* Аномальная зависимость генерационных характеристик растворов красителей от спектрального состава возбуждающего излучения при микросекундной когерентной накачке // Квант. электроника. – 2003. – Т.33, № 10. – С. 869 – 875. 4. *Тарковский В.В., Ануфрик С.С.* Эффективность генерации этанольных растворов при когерентной микросекундной накачке // Оптика и спектроскопия. – 2008. – Т.105, № 5. – С. 873 – 879. 5. *Anufrik S. S., Koldunov M.F., Manenkov A.A., Tarkovskii V.V.* Lasing efficiency of dyes incorporated into a nanoporous glass-polymer composite // Journal of Applied Spectroscopy. – 2008. V.75, No 5. – P. 714 – 722. 6. *Лазеры на красителях* / под ред. Шефера Ф.П. – М. : Мир, 1976. – 330с.

*Институт радиофизики и электроники
им. А.Я. Усикова НАН Украины*

Поступила в редколлегию 11.11.2013