

ПЕРЕСТРОЙКА ЧАСТОТЫ КВАНТОВЫХ ГЕНЕРАТОРОВ НА ОРГАНИЧЕСКИХ СОЕДИНЕНИЯХ

Б. И. Степанов и В. А. Батырев

Рассмотрено влияние параметров рабочего вещества (контур полос поглощения и люминесценции, накопление молекул в метастабильном состоянии, триплет-триплетное поглощение), резонатора и плотности немонахроматической радиации накачки на интенсивность генерации перестраиваемой частоты. Расширение полосы перестройки имеет место при увеличении интенсивности накачки и увеличении стоковского сдвига. При накоплении молекул в триплетном состоянии и увеличении триплет-триплетного поглощения, коэффициента потерь резонатора и толщины генерирующего слоя полоса перестройки сужается.

Частоту генерации сложных молекул ν_r можно варьировать, помещая внутрь резонатора селективирующие элементы (интерферометр Фабри—Перо, дифракционную решетку, призмы...). Обзор возможных методов перестройки дан в [1-4].

В данной работе рассмотрено влияние параметров рабочего вещества и резонатора на интенсивность генерации перестраиваемой частоты при немонахроматической накачке. Полученные данные будут способствовать выбору наиболее оптимальных режимов работы.

За основу расчета принят поперечный вариант, который близок к реальным схемам накачки импульсными лампами.

Рассмотрим квазистационарный режим, когда выполняется условие

$$k_{\text{ус.}}(t) = k_{\text{пот.}}(t). \quad (1)$$

Населенности уровней в расчете на единицу объема определяются формулами [1, 5, 6]

$$\frac{n_1}{n} = \frac{1 - \theta_{35} - \delta}{1 - \theta_{35} + \theta_{13}} \left[1 - \frac{(\delta + \theta_{13})(1 + \theta_{24} - \theta_{35})}{(1 - \theta_{35} - \delta)C} \frac{p_{32}}{p_{21}} (1 - e^{-\lambda t}) \right], \quad (2)$$

$$\frac{n_2}{n} = \frac{\delta + \theta_{13}}{C} \frac{p_{32}}{p_{21}} (1 - e^{-\lambda t}), \quad (3)$$

$$\frac{n_3}{n} = \frac{\delta + \theta_{13}}{1 - \theta_{35} + \theta_{13}} \left[1 - \frac{\theta_{13} - \theta_{24}}{C} \frac{p_{32}}{p_{21}} (1 - e^{-\lambda t}) \right], \quad (4)$$

где

$$\begin{aligned} \theta_{35} &= B_{35}(\nu_r)/B_{31}(\nu_r), \quad \theta_{24} = B_{24}(\nu_r)/B_{31}(\nu_r), \\ \theta_{13} &= B_{13}(\nu_r)/B_{31}(\nu_r), \quad C = 1 + (1 + p_{32}/p_{21})\theta_{13} - \theta_{35} - \theta_{24}p_{32}/p_{21}, \\ \delta &= k_{\text{пот.}}/z, \quad z = nh\nu_r B_{31}(\nu_r)/\nu, \quad \lambda = p_{21} \left(1 + \frac{\theta_{13} - \theta_{24}}{1 - \theta_{35} + \theta_{13}} \frac{p_{32}}{p_{21}} \right), \end{aligned}$$

$B_{ij}(\nu_r)$ — коэффициенты Эйнштейна, $k_{\text{пот.}}$ — коэффициент потерь резонатора, p_{31} , p_{32} и p_{21} — вероятности спонтанных оптических и неоптических переходов, n — общее число молекул в единице объема. Формулы (2)–(4) справедливы, если в моменты времени, предшествующие генерации, не

происходит накопления частиц на метастабильном уровне 2. Обычно это условие выполняется.

Коэффициент поглощения радиации накачки в рабочем канале $1 \rightarrow 3$ равен

$$k(\nu, t) = \frac{h\nu}{v} [B_{13}(\nu) n_1(t) - B_{31}(\nu) n_3(t)]. \quad (5)$$

Плотность мощности генерации при монохроматической накачке на расстоянии z от входной поверхности активного элемента определяется выражением [5, 6]

$$W_{\text{ген.}}(z, t) = W_{\text{погл.}}(z, t) - W_{\text{ус.}}(z, t) - Q(t), \quad (6)$$

где

$$W_{\text{погл.}}(z, t) = \int_{\nu_{\text{инв.}}}^{\nu_2} v \frac{\nu_r}{\nu} k(\nu, t) u_n(\nu, z, t) d\nu, \quad (7)$$

$$W_{\text{ус.}}(z, t) = \int_{\nu_1}^{\nu_{\text{инв.}}} v \frac{\nu_r}{\nu} |k(\nu, t)| u_n(\nu, z, t) d\nu, \quad (8)$$

$$Q(t) = h\nu_r (p_{31} + p_{32}) n_3(t). \quad (9)$$

Здесь $W_{\text{погл.}}(z, t)$ — плотность мощности поглощения в интервале частот от $\nu_{\text{инв.}}$ (частота, где $k(\nu, t) = 0$) до ν_2 (конечная частота спектрального интервала накачки), $W_{\text{ус.}}(z, t)$ — плотность мощности усиления падающей радиации в интервале частот от ν_1 (начальная частота спектрального интервала накачки) до $\nu_{\text{инв.}}$. Величина $Q(t)$ характеризует потери на люминесценцию и тепловыделение.

Распределение плотности радиации накачки по толщине слоя описывается в поперечном варианте законом Бутера

$$u_n(z, \nu, t) = u_n^0(\nu, t) e^{-k(\nu, t)z}. \quad (10)$$

Для простоты расчетов мы предполагаем, что поглощение радиации накачки возбужденными частицами можно не учитывать.

Для исходного расчета взяты следующие значения параметров: $n = 1 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$, $p_{32} = 1.7 \cdot 10^6 \text{ сек.}^{-1}$, $p_{21} = 0.4 \cdot 10^6 \text{ сек.}^{-1}$, $p_{31} = 1 \cdot 10^8 \text{ сек.}^{-1}$, $k_{\text{погл.}} = 0.01 \text{ см}^{-1}$. Контур полос поглощения и люминесценции был задан кривыми, приведенными на рис. 1, а—г, близкими к контурам полос родмина 6Ж. Значения $B_{13}(\nu)$ и $B_{31}(\nu)$ в максимумах полос поглощения и люминесценции были взяты равными $4 \cdot 10^5 \text{ эрг}^{-3} \cdot \text{сек.}^{-1} \cdot \text{см}$. Переход от кривых рис. 1, а к кривым рис. 1, б и г позволяет оценить влияние увеличения стоксового сдвига и соответственно расширения полос, переход от кривых рис. 1, а к кривым рис. 1, в — влияние расширения и асимметрии полосы люминесценции. При расчетах использовались три значения интегральной по частоте плотности радиации накачки ($u_n^0 = 30, 300, 3000 \text{ эрг} \cdot \text{см}^{-3}$). Предполагалось, что радиация накачки равномерно распределена в спектральном интервале от $\nu_1 = 15\ 000$ до $\nu_2 = 23\ 000 \text{ см}^{-1}$ и не зависела от времени. Плотность $u_n^0 = 30 \text{ эрг} \cdot \text{см}^{-3}$ соответствует плотностям, достигаемым при использовании обычных импульсных ламп (превышение порога в 2—3 раза), плотность $u_n^0 = 300 \text{ эрг} \cdot \text{см}^{-3}$ — более мощных пинч-ламп (превышение порога в 10 раз), плотность $u_n^0 = 3000 \text{ эрг} \cdot \text{см}^{-3}$ (превышение порога в 100 раз), по-видимому, еще не достигнута.

На рис. 1 приведены зависимости мощности $W_{\text{ген.}}(\nu_r)$ от перестраиваемой частоты генерации ν_r для всех четырех вариантов контуров полос и двух накачек. Для $u_n^0 = 3000 \text{ эрг} \cdot \text{см}^{-3}$ стрелками отмечена только область перестройки. Расчет выполнен для момента начала генерации $t = 0$ и входной поверхности генерирующего слоя $z = 0$.

Как видно из рис. 1, зависимость $W_{\text{ген.}}(\nu_r)$ имеет колоколообразный вид. Область перестройки частоты, как правило, захватывает длинновол-

новую часть полосы люминесценции. Рост интенсивности накачки сопровождается расширением области перестройки. При очень больших u_n^0 полоса перестройки охватывает всю полосу люминесценции, лежащую слева от частоты пересечения полос поглощения и люминесценции. Увеличение стоксового сдвига на 400 см^{-1} (переход от варианта *a* к варианту *б*) расширяет область перестройки примерно на 200 см^{-1} . Асимметричное расширение полосы люминесценции на 400 см^{-1} ($a \rightarrow в$) существенно уве-

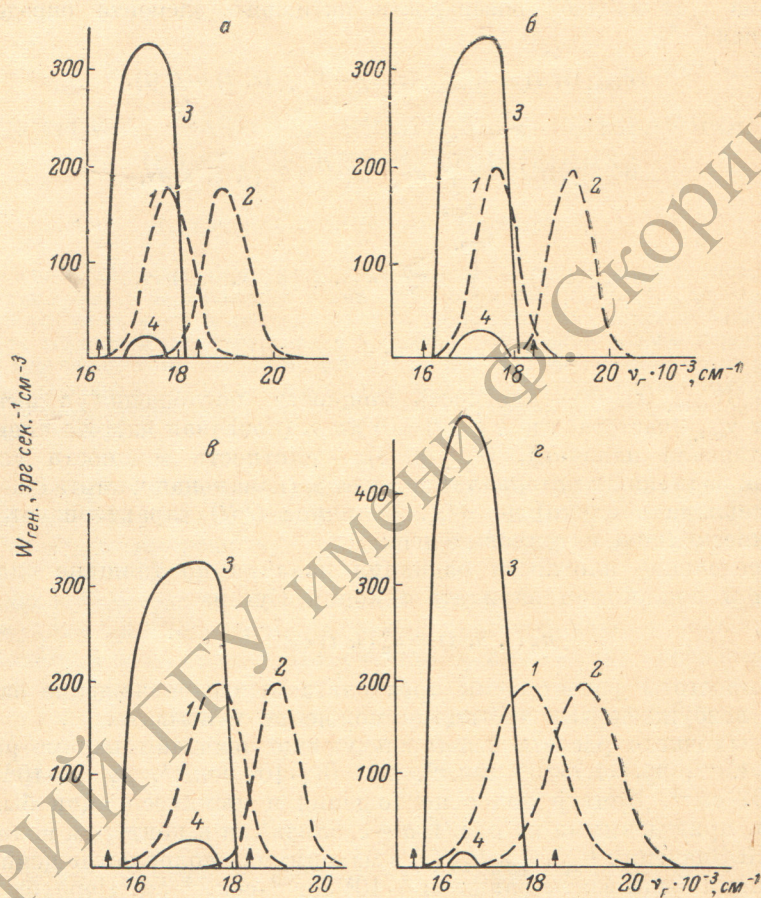


Рис. 1. Зависимость мощности генерации $W_{\text{ген}}$ при $t=0$ и $z=0$ от частоты генерации.

U_n^0 : 300 (3) и 30 эрг·см⁻²·сек⁻¹ (4). 1 и 2 — контуры $B_{31}(\nu)/B_{31}(\nu_{\text{max}})$ и $B_{12}(\nu)/B_{31}(\nu_{\text{max}})$ соответственно. Стрелками отмечена область генерации при $U_n^0=3000$ эрг·см⁻².

личивает область перестройки (на $600\text{--}800 \text{ см}^{-1}$). Одновременное расширение полос поглощения и люминесценции ($a \rightarrow в$) не дает эффекта, что связано с большим перекрытием полос поглощения и люминесценции. При сильном перекрытии полос и малых интенсивностях накачки область перестройки относительно невелика.

На рис. 2, *a* приведен вид функции $W_{\text{ген}}(\nu_r)$ при $z=0$ и $u_n^0=3000$ эрг·см⁻² для разных моментов времени при некоторых значениях отношения p_{32}/p_{21} . Форма полосы люминесценции дана штриховой кривой (форма полосы поглощения — на рис. 1, *a*). Кривая 1 относится к начальному моменту времени. Вид кривой для любых p_{32}/p_{21} одинаков. Развитие процесса во времени сопровождается переходом части молекул в метастабильное состояние, снижением мощности генерации и сокращением области перестройки. Если p_{32}/p_{21} невелико, то изменение кривой незначительно. Кривые 2 и 2' построены для значений p_{32}/p_{21} , равных 4 и 20, при $t > 2 \cdot 10^{-4}$ сек. Это время достаточно для установления стационар-

ного режима ($\exp(-\lambda t) \approx 0$). Все кривые для промежуточных времен ($t < 2 \cdot 10^{-4}$ сек.) лежат между кривыми 1 и 2. При больших p_{32}/p_{21} существ-

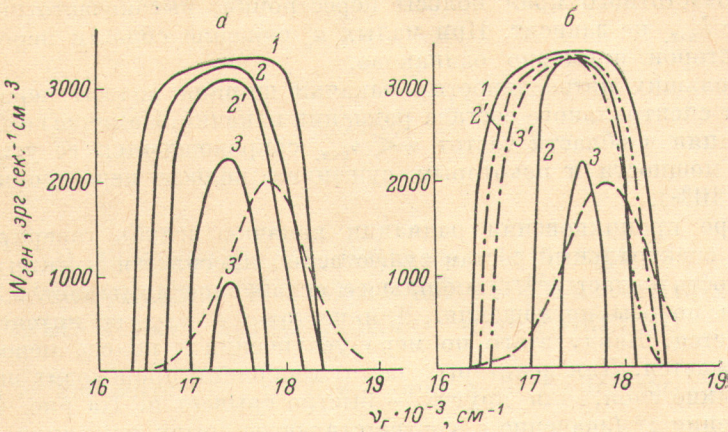


Рис. 2. Зависимость мощности генерации от частоты ν_r .

$U_n^0 = 3000$ эрг \cdot см $^{-3}$, $\theta_{24} = \theta_{35} = 0$. Штриховая линия — контур полосы люминесценции. а — кривая 1 — p_{32}/p_{21} любое, $t=0$, 2 — $p_{32}/p_{21}=4$, $t=2 \times 10^{-4}$ сек., 2' — $p_{32}/p_{21}=20$, $t=2 \cdot 10^{-4}$ сек., 3 — $p_{32}/p_{21}=1000$, $t=2 \times 10^{-8}$ сек., 3' — $p_{32}/p_{21}=1000$, $t=6 \cdot 10^{-8}$ сек., б — $\theta_{24} = B_{24}(\nu)/B_{31}(\nu_{max}) = 0.25$, $p_{32}/p_{21}=20$, $\theta_{35}=0$. Кривая 1 — $t=0$, 2 — $t=3 \cdot 10^{-7}$ сек., 3 — $t=1.3 \cdot 10^{-6}$ сек. Кривые 2' и 3' даны для тех же моментов времени при $\theta_{24}=0$.

венное ухудшение параметров генерации возникает уже на ранних стадиях процесса генерации (при $p_{32}/p_{21} = 1000$ уже при $t \sim 10^{-8}$ сек., см. кривые 3 и 3').

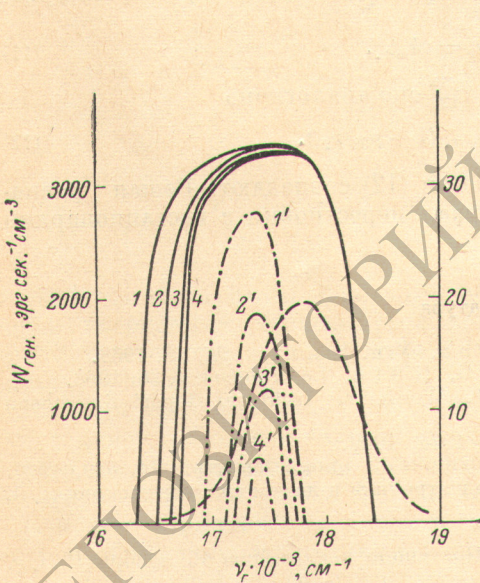


Рис. 3. Зависимость $W_{ген.}$ от частоты генерации ν_r при различных величинах $k_{пот}$.

$k_{пот}$: 0.01 (1, 1'), 0.03 (2, 2'), 0.05 (3, 3'), 0.07 (4, 4') см $^{-1}$. $U_n^0 = 3000$ эрг \cdot см $^{-3}$ — сплошные кривые, масштаб слева, 30 эрг \cdot см $^{-3}$ — штрихпунктирные кривые, масштаб справа. Штриховая линия — контур полосы люминесценции.

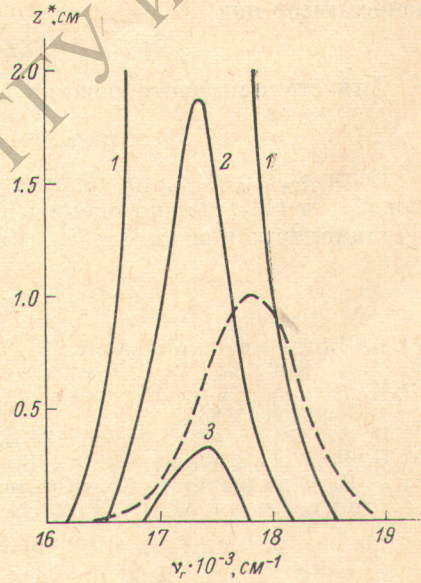


Рис. 4. Зависимость z^* от частоты генерации ν_r .

$U_n^0 = 3000$ (1), 300 (2), 30 (3) эрг \cdot см $^{-3}$. Штриховая линия — контур полосы люминесценции. Контур полосы поглощения на рис. 1, а.

Рис. 2, б позволяет оценить влияние поглощения генерируемой радиации метастабильными частицами. Расчет выполнен для сравнительно небольшой вероятности этого поглощения и малого значения p_{32}/p_{21} .

Область перестройки частоты генерации существенно зависит от коэффициента потерь особенно при небольших интенсивностях накачки (рис. 3). При больших u_n^0 изменение $k_{\text{пот.}}$ от 0.01 до 0.07 см^{-1} сопровождается отсечкой низкочастотного края полосы перестройки; высокочастотный край полосы от $k_{\text{пот.}}$ не зависит. При малых u_n^0 сужение области перестройки с обеих сторон примерно одинаково.

При больших интенсивностях накачки ширина полосы перестройки зависит от спектрального состава радиации накачки. Наличие возбуждающей радиации в области частот $\nu < \nu_{\text{инв.}}$ сопровождается ее усилением, потерями мощности и некоторым сужением полосы перестройки (примерно на 10%).

По мере проникновения радиации накачки вглубь генерирующего объема ее спектральный состав существенно изменяется и интегральная интенсивность падает [5]. Наибольшее ослабление возникает в области максимума полосы поглощения. Для частот $\nu < \nu_{\text{инв.}}$ ее интенсивность увеличивается. Ввиду этого по мере увеличения z полоса перестройки быстро сужается. Для некоторых частот генерация происходит на значительной длине слоя, для других — быстро срывается. На рис. 4 приведены значения z^* (значение z , соответствующее срыву генерации) в зависимости от частоты генерации ν_r . Максимум кривых во всех случаях лежит на длинноволновом краю полосы люминесценции. Сужение полосы перестройки по мере увеличения z особенно существенно при малых накачках.

Верхнюю границу области перестройки можно получить, анализируя выражение (2). Генерация возможна в принципе, если $n_1 > 0$. Так как значение n_1 зависит от частоты генерации, то, приравнявая (2) нулю и разрешая полученное уравнение относительно ν_r , можно получить интервал возможных изменений ν_r . Расчеты нужно производить численно, однако они не сложны. Для момента времени $t=0$ и $\theta_{35}=0$ рассматриваемое уравнение имеет вид

$$B_{31}(\nu_r) n h \nu_r = \nu k_{\text{пот.}} \quad (11)$$

Для стационарного режима ($t \rightarrow \infty$) оно аналогично

$$B_{31}(\nu_r) n h \nu_r = \nu k_{\text{пот.}} (1 + p_{32}/p_{21}) \quad (12)$$

Если $p_{32}/p_{21} \ll 1$, то уравнения (11) и (12) совпадают. Решая уравнения (11) и (12), можно оценить интервал перестройки в нестационарном и стационарном режимах.

Литература

- [1] Б. И. Степанов, А. Н. Рубинов. Усп. физ. наук, 95, 45, 1968.
- [2] M. R. Kagan, G. I. Farmer, B. G. Huth. Laser Focus, 4, 26, 1968.
- [3] M. Bass, T. E. Deutsch, W. J. Weber. Technical Report Raytheon Company, 1969.
- [4] В. В. Snavelу. Прос. IEEE, 57, 1374, 1969.
- [5] Б. И. Степанов, В. А. Батырев. Ж. прикл. спектр., 14, 619, 1971.
- [6] Б. И. Степанов. Сб. «Квантовая электроника и лазерная спектроскопия», 3. Инст. физики АН БССР, 1971.

Поступило в Редакцию 15 ноября 1971 г.