

УДК 621.373 : 535 (206.2)

ИССЛЕДОВАНИЕ ПОТЕРЬ ГЕНЕРИРУЕМОГО ИЗЛУЧЕНИЯ В РАСТВОРАХ РОДАМИНА 6Ж ПРИ КВАЗИПРОДОЛЬНОМ ЛАЗЕРНОМ ВОЗБУЖДЕНИИ

Аристов А. В., Еременко А. С., Николаев А. Б.

В результате исследований зависимости обратной величины квантового выхода генерируемого вынужденного излучения от обратной величины коэффициента полезных потерь установлена количественная зависимость наведенных потерь в каналах накачки и генерации от объемной плотности поглощаемого возбуждающего излучения. Сделан количественно обоснованный вывод, что резерв существенного повышения КПД генерации на растворах родамина 6Ж состоит в уменьшении наведенного накачкой светорассеяния.

В работе приведены результаты исследования потерь генерируемого излучения (ГИ) по измерению его квантового выхода ($\gamma_{\text{ГН}}$) в условиях варьирования пропускания зеркал резонатора при квазипродольной накачке второй гармоникой неодимового лазера этанольных растворов родамина 6Ж.

Наглядная математическая зависимость величины $1/\gamma_{\text{ГН}}$ от коэффициента полезных потерь на выходных зеркалах (K_r) представлена следующим уравнением:

$$\frac{1 - \frac{1}{X}}{\gamma_{\text{ГН}}} = \frac{G}{\gamma_{\text{ГН}}^{\text{пр}}} + \frac{G}{K_r \gamma_{\text{ГН}}^{\text{пр}}} \{K_{\text{пр}} + a_r (1 - \gamma_{\text{ГН}}^{\text{пр}})\}, \quad (1)$$

где X — превышение мощности накачки внешним источником над пороговой, $1/G$ — коэффициент использования излучения накачки, поглощаемого в активной среде (при $G=1$ каждый поглощенный квант приводит к возбуждению молекул красителя на лазерный уровень), $\gamma_{\text{ГН}}^{\text{пр}}$ — предельный квантовый выход ГИ, представляющий спектроскопическую характеристику предельной лазерной эффективности конкретного раствора (уравнение (2) [1]), a_r — коэффициент поглощения ГИ невозбужденными молекулами красителя, $K_r = (1/2l) \ln (1/r_1 r_2)$ — длина кюветы, r_1, r_2 — коэффициенты отражения выходных зеркал резонатора, $K_{\text{пр}}$ — коэффициент поглощения, количественно характеризующий прочие потери ГИ в растворе и резонаторе (кроме поглощения возбужденными молекулами и полезных потерь на выходном зеркале).

$$\gamma_{\text{ГН}}^{\text{пр}} = 1 - \frac{\sum_i \sigma_i^+ \alpha_i}{\sigma_{S_1 S_0}^+} \quad (2)$$

Здесь σ_i^+ — сечение поглощения на частоте ГИ возбужденными молекулами в i -м состоянии, α_i — коэффициент, равный отношению концентраций молекул в i -м состоянии к концентрации молекул лазерного красителя в S_1 -м состоянии, $\sigma_{S_1 S_0}^+$ — сечение предельного усиления на частоте генерации.

Из уравнения (1) следует, что при $X \gg 1$ и в условиях независимости величин G , $\gamma_{\text{ГН}}^{\text{пр}}$, $K_{\text{пр}}$, $a_r (1 - \gamma_{\text{ГН}}^{\text{пр}})$ от K_r функциональная зависимость $1/\gamma_{\text{ГН}}$ от $1/K_r$ описывается прямой линией с наклоном к оси абсцисс, равным

$$\frac{G}{\gamma_{\text{ГН}}^{\text{пр}}} \{K_{\text{пр}} + a_r (1 - \gamma_{\text{ГН}}^{\text{пр}})\}.$$

При этом линия на оси ординат отсекает отрезок, соответствующий величине $G/\eta_{\text{ги}}^{\text{пр}}$.

Таким образом, представляется возможность сравнительно простой экспериментальной проверки оптимальных условий генерации на конкретных активных элементах, в частности на растворах лазерных красителей. Действительно, экспериментальная зависимость величины $1/\eta_{\text{ги}}$ от $1/K_r$ в виде прямой линии свидетельствует о хороших лазерных свойствах конкретных растворов красителей и благоприятных условиях возбуждения генерации. Линейная зависимость $1/\eta_{\text{ги}}$ от $1/K_r$ может наблюдаться только при $X \gg 1$, т. е. при достаточно мощном возбуждении и практическом отсутствии процессов дезактивации состояния S_1 (включая суперлюминесценцию), которые могли бы составить заметную конкуренцию усилению генерируемого излучения. Далее линейная зависимость показывает, что в условиях изменения значений n_{S_1} (сопровождающего варьирование в широком диапазоне K_r) не проявляется возможное поглощение излучения накачки молекулами в состоянии S_1 или фотопродуктами, образующимися через это состояние. В противном случае величина G находилась бы в опосредованной через n_{S_1} зависимости от K_r . При этом зависимость величины a_r (обычно в лазерах на красителях с продольной накач-

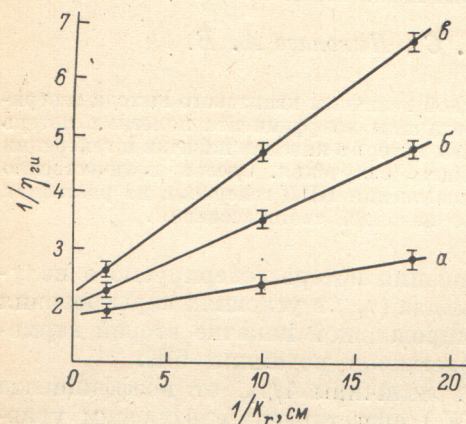


Рис. 1. Экспериментальная зависимость величины $1/\eta_{\text{ги}}$ от величины $1/K_r$ при следующих значениях коэффициента дополнительных потерь, внесенных в резонатор: 0 (а), 0.041 (б) и 0.082 см^{-1} (в).

кой $a_r \geq K_{\text{пр}}$) от концентрации невозбужденных молекул n_{S_0} (в свою очередь зависящей от n_{S_1}) практически не проявляется на обсуждаемых графиках, если величина $\eta_{\text{ги}}^{\text{пр}}$ мало отличается от 1. В случае $\eta_{\text{ги}}^{\text{пр}} \ll 1$ величина a_r заметно влияет на численные значения выражения в фигурных скобках уравнения (1). Это может привести (особенно при $n_{S_0} \approx n_{S_1}$) к нарушению обсуждаемой прямолинейной зависимости на рис. 1. Следовательно, прямолинейная зависимость может наблюдаться только при одновременном выполнении условия малых потерь на поглощение возбужденными молекулами излучения накачки и генерации (близости величины $\eta_{\text{ги}}^{\text{пр}}$ к 1), а также в отсутствие заметной конкуренции излучательных и безызлучательных процессов дезактивации состояния S_1 излучательному переходу, приводящему к усилению генерируемого потока.

Если эта линейная зависимость не наблюдается, то необходимы исследования причин отклонения от линейности. Признаком достаточности сведений об этих причинах может служить линеаризация зависимости $1/\eta_{\text{ги}}$ от $1/K_r$ при введении в уравнение (1) параметров с установленной функциональной зависимостью от $1/K_r$. Это относится и к выражению $(1-1/X)$ в тех случаях, когда она заметно меньше 1. Перед исследованием конкретных растворов была проверена возможность применения обсуждаемого метода в условиях квазипродольной импульсной накачки, заметно отличающихся от теоретических условий вывода формулы (1). Эта формула выведена в предположении о стационарной генерации при равномерном возбуждении [2]. Квазипродольная накачка гигантским импульсом оптически плотных растворов красителей (в спектральной области возбуждения) сопровождается, как известно, значительной неоднородностью интенсивности накачки вдоль оси кюветы. Поскольку это обстоятельство явным образом не учтено при выводе формулы (1), то входящие в нее параметры могут соответствовать лишь средним одноименным величинам в пределах объема раствора [3].

Проверка возможности применения метода проводилась на этанольных растворах родамина 6Ж в условиях продольного лазерного возбуждения вто-

рой гармоникой неодимового лазера. Плотность энергии накачки на торце кюветы варьировалась в пределах значений $\varepsilon = 1 \div 4$ Дж/см² при длительности импульса ~ 50 нс, что соответствует плотности мощности $\sim 20\text{--}80$ МВт/см². Возбуждающий поток диаметром 1 см направлялся на торцы круглых кювет длиной 2 и 10 см через селективное зеркало, практически полностью отражающее излучение на длине волны генерации красителя и пропускающее излучение накачки. На рис. 1 приведены результаты измерений величины $1/\eta_{\text{гн}}$ при значениях $1/K_r$ от 2 до 18 см для кюветы длиной 2 см и $\varepsilon \approx 1$ Дж/см². Величина $\eta_{\text{гн}}$ измерялась по амплитудным значениям квантовых мощностей накачки и генерации в условиях практически полного поглощения излучения накачки в растворах с исходной оптической плотностью $D_{10}=8$. Линии соответствуют следующим значениям коэффициента потерь $K_{\text{гн}} : K_{\text{гн}0}$ (а) $K_{\text{гн}0} + \Delta$, (б), $K_{\text{гн}0} + \Delta''$ (в). Эталонные прозрачные пластинки имели приведенные к длине кюветы коэффициенты потерь: $\Delta' = 0.041$ см⁻¹, $\Delta'' = 2\Delta'$. Из рис. 1 следует, что при всех значениях $K_{\text{гн}}$ зависимость $1/\eta_{\text{гн}}$ от $1/K_r$ с большой достоверностью представлена прямыми линиями. Обработка экспериментальных результатов с помощью формулы (1) в таких условиях не представляет затруднений.

Тангенсы углов $\alpha_0, \alpha', \alpha''$, определяемые по отношению отрезков на осях $1/\eta_{\text{гн}}$ и $1/K_r$, численно равны коэффициентам при $1/K_r$ в (1)

$$\text{tg } \alpha_0 = G_0/\eta_{\text{гн}}^{\text{пр}} \{K_{\text{гн}0} + a_r(1 - \eta_{\text{гн}}^{\text{пр}})\}, \quad (3)$$

$$\text{tg } \alpha' = G'/\eta_{\text{гн}}^{\text{пр}} \{K_{\text{гн}0} + \Delta' + a_r(1 - \eta_{\text{гн}}^{\text{пр}})\}, \quad (4)$$

$$\text{tg } \alpha'' = G''/\eta_{\text{гн}}^{\text{пр}} \{K_{\text{гн}0} + \Delta'' + a_r(1 - \eta_{\text{гн}}^{\text{пр}})\}. \quad (5)$$

Величины $G_0/\eta_{\text{гн}}^{\text{пр}}$, $G'/\eta_{\text{гн}}^{\text{пр}}$ и $G''/\eta_{\text{гн}}^{\text{пр}}$ определяются по отсекаемым прямой линией отрезкам на оси ординат, представленных в соответствующем масштабе.

Необходимо отметить, что с целью более полной проверки применимости формулы (1) к случаю лазерной накачки в оптически плотных на длине волны возбуждения растворах красителей одновременно с введением в резонатор эталонных пластинок также моделировались потери в канале накачки. Это делалось нормируемым ослаблением возбуждающего потока. Такое моделирование потерь в канале накачки приводит к изменению параметра G .

После графического определения величин $G', G''/\eta_{\text{гн}}^{\text{пр}}$ и $\text{tg } \alpha', \alpha''$ вычисляются численные значения вносимых в резонатор потерь

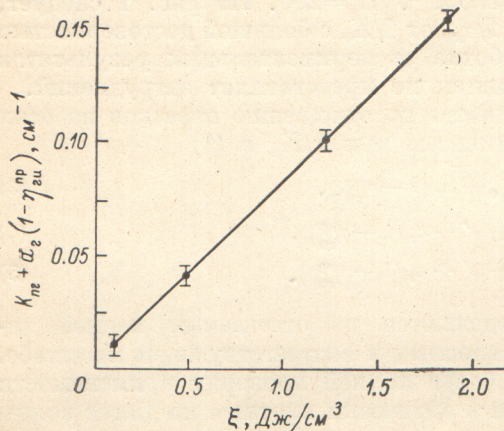
$$\Delta' = \frac{\text{tg } \alpha' \eta_{\text{гн}}^{\text{пр}}}{G'} - \frac{\text{tg } \alpha_0 \eta_{\text{гн}}^{\text{пр}}}{G_0}, \quad (6)$$

$$\Delta'' = \frac{\text{tg } \alpha'' \eta_{\text{гн}}^{\text{пр}}}{G''} - \frac{\text{tg } \alpha_0 \eta_{\text{гн}}^{\text{пр}}}{G_0}. \quad (7)$$

Вычисления показали, что $\Delta'_{\text{эксн}} = 0.043$ см⁻¹, $\Delta''_{\text{эксн}} = 0.082$ см⁻¹. Практически тождественное совпадение определенных с помощью уравнений (6) и (7) величин Δ' и Δ'' с их истинными значениями свидетельствует о возможности метрически достоверного определения численных значений резонаторных параметров, характеризующих условия генерации концентрированных растворов красителей при их возбуждении гигантским импульсом. Аналогичные результаты были получены при других плотностях накачки, а также при длине кюветы $l=10$ см.

Необходимо прокомментировать этот важный результат. В общем случае можно было бы предполагать, что различие условий вывода уравнения (1) и условий эксперимента с лазерной накачкой оптически плотных растворов делает затруднительным достоверное математическое описание связи генерационных и резонаторных параметров с помощью обсуждаемого уравнения. Однако практическое совпадение численных значений коэффициентов вносимых потерь с их действительными значениями показало хорошую математическую корректность описания этой связи. Этим подтверждается правильность предположения, что наибольшее амплитудное значение квантовой интенсивности импульса генерируемого потока в выбранных условиях опыта может быть отождествлено с одноименной величиной в стационарном режиме генерации. Имею-

щаяся неоднородность плотности возбуждения вдоль оси кюветы практически не проявилась в виде фактора, ограничивающего возможность применения формулы (1), в которой соответствующие параметры, характеризующие усиление и потери, входят в виде средних значений по длине кюветы. На это обстоятельство указано в [3]. Это подтверждают приведенные ранее результаты обработки измерений с помощью формулы (1), в которой реальные потери на зеркалах и вносимые в резонатор эталонные потери входят в виде равномерно распределенных по длине кюветы и характеризуются коэффициентами соответствующих потерь. Дальнейшие исследования с помощью обсуждаемого метода были применены к выяснению изменения условий генерации при изменении длины кюветы с 2 до 10 см. При этом исходная оптическая плотность раствора $D_{10}=8$ оставалась постоянной. Нами было установлено, что этот переход сопровождается увеличением КПД генерации в 1.2 и 1.3 раза при плотности



накачки 1 и 4 Дж/см² соответственно. Обработка результатов показала, что численные значения G/γ_{gr}^{np} в короткой и длинной кюветах соотносятся как 1.25. Численные значения фигурной скобки (уравнение (1)) при плотности накачки ~ 1 Дж/см² для кювет с длинами 2 и 10 см составили соответственно 0.04 и 0.012 см⁻¹.

Рис. 2. Зависимость коэффициента потерь $K_{nr} + a_r(1 - \gamma_{gr}^{np})$ от средней по длине кюветы объемной плотности излучения накачки ξ .

Можно предположить поэтому, что повышение КПД при смене кювет обусловлено понижением объемной плотности потока накачки и, как следствие, уменьшением потерь на светорассеяние, наводимого этим потоком. На рис. 2 приведена зависимость величины $K_{nr} + a_r(1 - \gamma_{gr}^{np})$ от средней по длине кюветы объемной плотности излучения, изменяемой варьированием как торцевой плотности накачки, так и длины кюветы. Из рис. 2 следует, что изменение средней объемной плотности накачки в 20 раз, т. е. с 0.1 до 2 Дж/см³, сопровождается линейным возрастанием величины $K_{nr} + a_r(1 - \gamma_{gr}^{np})$.

Таким образом, подтверждается приведенное предположение о влиянии объемной плотности накачки на наведенное рассеяние генерируемого излучения.

Это же рассеяние приводит, по-видимому, к уменьшению коэффициента использования излучения накачки при изменении длины кюветы с 10 до 2 см, однако в меньшей степени (приблизительно в 1.25 раза), чем к увеличению коэффициента вредных потерь генерируемого излучения. Это происходит потому, что рассеяние, хотя и ослабляет первичный поток накачки, но одновременно создает также более благоприятные условия для перепоглощения рассеянной составляющей потока из-за увеличения его оптического пути в поглощающем растворе. Результаты расчета по уравнению (1) позволили сделать вывод о том, что установленное нами увеличение КПД генерируемого излучения при изменении длины кюветы с 2 до 10 см происходит преимущественно за счет повышения эффективности использования потока возбуждающего излучения в более длинной кювете. Зависимость величины $1/\gamma_{gr}$ от $1/K_r$, близкая к линейной, во всех исследованных случаях дает основание для заключения о том, что условия эксперимента в основном соответствуют перечисленным ранее условиям линеаризации обсуждаемой зависимости, в том числе практическому отсутствию поглощения возбужденными молекулами излучения на длине волны 530 нм и достаточно близкому к 1 значению γ_{gr}^{np} . Эти сведения находятся в хорошем соответствии с результатами [1, 4, 5]. Если иметь в виду также достаточно строгое выполнение неравенства $X \gg 1$ во всем диапазоне

изменения K_r , то можно считать, что резерв существенного повышения КПД генерации на родаминовых растворах состоит в уменьшении наведенного накачкой светорассеяния путем выбора соответствующих растворителей.

Литература

- [1] Аристов А. В., Маслюков Ю. С. — Опт. и спектр., 1980, т. 48, в. 4, с. 815—818.
- [2] Методы расчета оптических квантовых генераторов / Под ред. Б. И. Степанова. Т. I. Минск, 1966. 484 с.
- [3] Степанов Б. И. Методы расчета оптических квантовых генераторов на органических красителях при монохроматическом возбуждении. Минск, 1969. 55 с.
- [4] Аристов А. В., Шевандин В. С. — Опт. и спектр., 1977, т. 43, в. 2, с. 228—232.
- [5] Аристов А. В., Шевандин В. С. — Опт. и спектр., 1981, т. 51, в. 1, с. 110—114.

Поступило в Редакцию 28 января 1986 г.
