Доклады Академии наук СССР
1970. Том 190, № 5

УДК 535.35 *ФИЗИКА*

Академик АН БССР Б. И. СТЕПАНОВ

ВРЕМЕННАЯ ЗАВИСИМОСТЬ МОЩНОСТИ ГЕНЕРАЦИИ ОРГАНИЧЕСКИХ КРАСИТЕЛЕЙ

Теоретический расчет мощности нестационарной генерации выполнен в [1]. При расчете предполагалось, что коэффициент усиления равен коэффициенту потерь. Это предположение не всегда справедливо, и границы его применимости заранее не ясны. В данной работе произведен более строгий расчет временных характеристик генерации и последовательный учет накопления частиц на метастабильном уровне. Поглощение радиации возбужденными частицами не учитывалось.

Рассмотрим элементарный объем генерирующего раствора красителя. Уравнения баланса для определения населенностей n_1, n_2, n_3 (см. рис. 6 в [1]) имеют вид [1]

$$dn_3 / dt = B_{13}(\nu_{\text{н}}) u_{\text{н}} (n_1 - n_3 e^{-b}) - B_{31}(\nu_{\text{г}}) u_{\text{г}} (n_3 - n_1 e^{-a}) - (p_{31} + p_{32}) n_3; \tag{1}$$

$$dn_2 / dt = p_{32} n_3 - p_{21} n_2; \tag{2}$$

$$n_1 + n_2 + n_3 = n, \tag{3}$$

где $B_{ij}(\nu)$ — коэффициент Эйнштейна; p_{ij} — вероятности спонтанных переходов; $u_{\text{н}}$ и $u_{\text{г}}$ — плотности радиации накачки и генерируемого излучения; $\nu_{\text{н}}$ и $\nu_{\text{г}}$ — соответствующие частоты; $a = (\nu_{\text{эл}} - \nu_{\text{г}}) / kT$, $b = (\nu_{\text{н}} - \nu_{\text{эл}}) / kT$. Значение $u_{\text{н}}$ задано, а плотность $u_{\text{г}}$ неизвестна. Для ее определения служит обычное уравнение [2]

$$du_{\text{г}} / dt = v\mu (\varkappa y - k_{\text{пот}}) u_{\text{г}}, \tag{4}$$

где v — скорость света, μ — отношение оптической длины активного слоя к полной оптической длине резонатора; $\varkappa y$ — коэффициент усиления, $\varkappa = B_{31}(\nu_{\text{г}}) h\nu_{\text{г}} n / v$ — предельное значение коэффициента усиления,

$$y = \frac{n_3}{n} - \frac{n_1}{n} e^{-a} \tag{5}$$

степень инверсности; $k_{\text{пот}}$ — коэффициент потерь, рассчитанный на единицу объема. Из (1) — (3) следует

$$dy/dt = G - Dy - B'_{31}(\nu_{\text{г}}) y u_{\text{г}} - (G - p_{21} e^{-a}) n_2/n; \tag{6}$$

$$d(n_2/n)/dt = p'_{32}(e^{-a} + y) - \alpha n_2/n, \tag{7}$$

где $B'_{31}(\nu_{\text{г}}) = B_{31}(\nu_{\text{г}})(1 + e^{-a})$, $p'_{32} = p_{32}/(1 + e^{-a})$, $\alpha = p'_{32} e^{-a} + p_{21}$,

$$G = B_{13}(\nu_{\text{н}}) u_{\text{н}} [1 - e^{-(a+b)}] - (p_{31} + p'_{32}) e^{-a}; \tag{8}$$

$$D = B_{13}(\nu_{\text{н}}) u_{\text{н}} (1 + e^{-b}) + (p_{31} + p'_{32}). \tag{9}$$

Система уравнений (4), (6), (7) относительно $u_{\text{г}}$, y и n_2 может быть проинтегрирована в численной форме *, если задан вид функции $u_{\text{н}}(t)$. Более общие сведения можно получить, если воспользоваться для решения приближенным методом А. М. Самсона [2].

---

* В работе [3] такой расчет выполнен для некоторых значений параметров без учета дезактивации второго уровня.

Положим в первом приближении

$$y = y^* = k_{\text{пот}} / \varkappa; \tag{10}$$

$$n_2(t) = np'_{32}(e^{-a} + y^*)(1 - e^{-\alpha t}) + n_2(0)e^{-\alpha t}; \tag{11}$$

$$u_{\text{г}}^*(t) = \frac{[1 - e^{-(a+b)}](1 - n_2/n) - y^*(1 + e^{-b})}{y^*}[u_{\text{н}}(t) - u'_{\text{н}}(t)], \tag{12}$$

где

$$u'_{\text{н}}(t) = \frac{1}{B_{13}(\nu_{\text{н}})} \cdot \frac{(p_{31} + p'_{32})(e^{-a} + y^*) - (p_{31} + p'_{32} - p_{21})e^{-a}n_2/n}{[1 - e^{-(a+b)}](1 - n_2/n) - y^*(1 + e^{-b})}, \tag{13}$$

и будем искать решение (6), (7) в виде

$$u_{\text{г}}(t) = u_{\text{г}}^*(t) + \Delta u_{\text{г}}, \quad y = y^* + \Delta y. \tag{14}$$

Выражение (11) следует из (7) при выполнении (10), выражение (12) — из (6) при выполнении (10) и (11).

Если бы значения Δy и $\Delta u_{\text{г}}$ равнялись нулю, то это бы означало, что в каждый момент t устанавливается квазистационарный режим, определяемый значением $u_{\text{н}}(t)$ и $n_2(t)$. При $u_{\text{н}}'(t) > u_{\text{н}}(t)$ квазистационарная генерация невозможна. Ввиду этого величину $u_{\text{н}}'(t)$ можно назвать пороговым значением радиации накачки при квазистационарной генерации. По мере накопления частиц на метастабильном уровне значение $u_{\text{н}}'(t)$ растет. Приравнивая $u_{\text{н}}(t)$ и $u_{\text{н}}'(t)$ и разрешая полученное уравнение относительно t, можно найти момент срыва квазистационарной генерации.

Подставляя (13) и (10) — (12) в (6) и (4), получим

$$d\Delta y/dt = -[B'_{31}(\nu_{\text{г}})u_{\text{г}}^* + D]\Delta y - B'_{31}(\nu_{\text{г}})y^*\Delta u_{\text{г}}; \tag{15}$$

$$d\Delta u_{\text{г}}/dt = v\mu\varkappa u_{\text{г}}^*\Delta y - du_{\text{г}}^*/dt. \tag{16}$$

При расчете отброшены члены $\Delta y \Delta u_{\text{г}}$, которые, как будет видно из дальнейшего, в большинстве случаев действительно малы.

Для генерации выбирают красители с возможно меньшими значениями p_{32} и, следовательно, α. Ввиду этого накопление частиц на уровне 2 сравнительно медленно. При возбуждении генерации красителей импульсными лампами изменение $u_{\text{н}}(t)$ и, следовательно, $u_{\text{г}}^*(t)$ также невелико. Систему (15) — (16) можно решать для некоторого интервала времени, предполагая, что величины n_2, $u_{\text{г}}^*$ и $du_{\text{г}}^*/dt$ внутри интервала практически неизменны. В некоторых случаях подобная процедура справедлива и для возбуждения генерации красителей лазерными источниками.

Решение (15) — (16) при сделанном предположении имеет вид

$$\Delta y = \frac{1}{v\mu\varkappa u_{\text{г}}^*}(c_1\lambda_1 e^{\lambda_1 t} + c_2\lambda_2 e^{\lambda_2 t}) + \frac{1}{v\mu\varkappa u_{\text{г}}^*}\frac{du_{\text{г}}^*}{dt}; \tag{17}$$

$$\Delta u_{\text{г}} = c_1 e^{\lambda_1 t} + c_2 e^{\lambda_2 t} + \frac{B'_{31}(\nu_{\text{г}})u_{\text{г}}^* + D}{v\mu k_{\text{пот}}B'_{31}(\nu_{\text{г}})u_{\text{г}}^*}\frac{du_{\text{г}}^*}{dt}, \tag{18}$$

где c_1, c_2 — постоянные интегрирования, а

$$\lambda_{1,2} = -{}^1/_2[B'_{31}(\nu_{\text{г}})u_{\text{г}}^* + D] \pm {}^1/_2\{[B'_{31}(\nu_{\text{г}})u_{\text{г}}^* + D]^2 - 4v\mu k_{\text{пот}}B'_{31}(\nu_{\text{г}})u_{\text{г}}^*\}^{1/2}. \tag{19}$$

В наиболее типичных случаях справедливо неравенство

$$[B'_{31}(\nu_{\text{г}})u_{\text{г}}^* + D]^2 \gg 4v\mu k_{\text{пот}}B'_{31}(\nu_{\text{г}})u_{\text{г}}^*. \tag{20}$$

Оно нарушается иногда только при очень малых накачках. Если $2v\mu k_{\text{пот}} < p_{31} + p_{32}'$, то соотношение (20) выполняется при любых накачках, превышающих пороговую. Из (20) и (19) следует

$$\lambda_1 = -[B_{31}'(\nu_г)u_г^* + D], \tag{21}$$

$$\lambda_2 = -v\mu k_{пот}\frac{B_{31}'(\nu_г)u_г^*}{B_{31}'(\nu_г)u_г^* + D}. \tag{22}$$

Уже при весьма малых превышениях порога ($u_н > 1{,}05u_н'$) величина λ_2 становится близкой к $v\mu k_{пот}$, модуль λ_1 всегда больше модуля λ_2. При возбуждении генерации импульсными лампами обычно пользуются резонаторами с малыми коэффициентами потерь порядка 0,01 $см^{-1}$. В этих случаях $\lambda_2 \sim -10^8$ $сек^{-1}$. Два первых слагаемых (17) и (18) достигают нуля за время $\sim 10^{-8}$ сек., и поэтому при расчете свойств генерации, возбуждаемой импульсными лампами ($\Delta t \sim 10^{-5}$—10^{-4} сек.), их можно не учитывать. Если же генерация возбуждается лазерными источниками малой длительности ($\Delta t \sim 10^{-8}$ сек.), то вторые слагаемые (17) и (18) значительны, особенно в начальные моменты времени. Пользоваться формулами (10) и (12) при лазерном возбуждении можно только при $\mu k_{пот} >$ $> 0{,}1$ $см^{-1}$.

Приведенные рассуждения справедливы практически для любых n_2/n. Накопление частиц на метастабильном уровне может вызвать резкое уменьшение $|\lambda_2|$ (вплоть до нуля) только в том случае, если величина n_2/n приближается к единице, а порог генерации — к бесконечности.

Нетрудно показать также, что третьи слагаемые (17)—(18), как правило, очень малы, и их учет может иметь смысл только вблизи порога генерации. Уже при $u_н > 1{,}1u_н'$

$$\frac{\Delta y}{y^*} = \frac{\Delta u_г}{u_г^*} = \frac{1}{v\mu k_{пот}}\frac{1}{u_г^*}\frac{du_г^*}{dt}. \tag{23}$$

Величина $\frac{1}{u_г^*}\frac{du_г^*}{dt}$ несколько меньше $1/\Delta t$, где Δt — длительность импульса генерации. При ламповой накачке $\Delta u_г$ на несколько порядков меньше $u_г^*$. При возбуждении генерации лазерными источниками малой длительности отношение (23) мало только при $\mu k_{пот} > 0{,}1$ $см^{-1}$.

Таким образом, формулы квазистационарного режима (10)—(12) правильно описывают свойства генерации красителей, возбуждаемой импульсными лампами. При возбуждении лазерными источниками их можно применять при $v\mu\Delta t k_{пот} > 1$.

В некоторых случаях возможно возникновение пульсаций плотности генерируемого излучения около их квазистационарного значения (12). Такая ситуация будет осуществляться при комплексных λ, т. е. согласно (20), в интервале плотностей радиации накачки от $u_н^{(1)}$ до $u_н^{(2)}$, определяемых соотношением (при $p_{21} \ll p_{31} + p_{32}'$)

$$B_{13}(\nu_н)u_н = (p_{31} + p_{32}')e^{-a} + \frac{2k_{пот}}{\varkappa(1 - n_2/n)^2}\left\{v\mu k_{пот}\left[1 - \frac{n_2}{n} - \right.\right.$$
$$\left.\left. - \frac{k_{пот}}{\varkappa}(1 + e^{-b})\right] \pm \sqrt{M}\right\}, \tag{24}$$

где

$$M = v\mu k_{пот}\left\{v\mu k_{пот}\left[1 - \frac{n_2}{n}\frac{k_{пот}}{\varkappa}(1 + e^{-b})\right]^2 - (p_{31} + p_{32}')\left(1 - \frac{n_2}{n}\right)^2(1 + e^{-a}).\right. \tag{25}$$

Значение M должно быть больше нуля. Это условие реализуется только при больших коэффициентах потерь. При не слишком больших n_2 оно эквивалентно неравенству

$$v\mu k_{пот} > p_{31} + p_{32}'. \tag{26}$$

Декремент затухания пульсаций весьма велик. Ввиду этого наблюдение пульсаций возможно только при очень малых $u_н$ (вблизи $u_н'$) в первые моменты времени.

Численное решение системы уравнения (6), (7) и уравнения (4) с дополнительным членом, описывающим спонтанное испускание, было выполнено Р. А. Карамалиевым. Расчеты показывают, что квазистационарное решение (10) — (12) правильно описывает процесс. Отступления наблюдаются только в самые первые моменты формирования генерации. Экспериментальные данные, полученные в нашей лаборатории, согласуются с (10) — (12). В некоторых случаях наблюдаются пульсации излучения.

Институт физики
Академии наук БССР
Минск

Поступило
13 X 1969

ЦИТИРОВАННАЯ ЛИТЕРАТУРА

[1] Б. И. Степанов, А. Н. Рубинов, УФН, 95, 45 (1968). [2] Методы расчета оптических квантовых генераторов, под ред. Б. И. Степанова, 2, Минск, 1968. [3] P. P. Sorokin, J. R. Lankard et al., IBM J. Rev. and Dev., 11, 130 (1967); J. Chem. Phys., 48, 4726 (1968).