

С.В. Николаев, В.В. Пожар

ДИХРОИЗМ КОЭФФИЦИЕНТА УСИЛЕНИЯ АКТИВНОЙ СРЕДЫ ЛАЗЕРОВ НА КРАСИТЕЛЯХ С ПОЛЯРИЗОВАННЫМ ИЗЛУЧЕНИЕМ

Теоретически исследованы свойства коэффициента усиления лазеров на красителях с поляризационно-анизотропными резонаторами. В стационарном приближении рассчитаны спектральные и поляризационные характеристики коэффициента усиления для двух режимов работы лазера: с широкополосным и узкополосным резонаторами. Показано, что при генерации линейно-поляризованного излучения возникающая анизотропия коэффициента усиления имеет частотную зависимость, т.е. коэффициент усиления обладает дихроизмом. Установлено, что данный эффект вызван перекрытием полос излучения и поглощения красителя и зависит от параметров лазера: скорости накачки и добротности резонатора. Кроме того, для узкополосного перестраиваемого лазера обнаружена зависимость дихроизма коэффициента усиления от частоты настройки.

Поляризация излучения импульсных лазеров на красителях (ЛК) с ламповой накачкой чаще всего используется для минимизации потерь на отражение от граней различных внутрирезонаторных элементов, применяемых для управления спектром генерации. Это обстоятельство, связывающее на практике поляризационные и спектральные характеристики ЛК, требует их совместного рассмотрения и при изучении процессов генерации подобных лазеров. Однако в проведенных ранее исследованиях поляризационных характеристик ЛК [1–4] использовалось лишь одночастотное приближение, что не давало полного представления об особенностях коэффициента усиления их активной среды, обладающей широкими перекрывающимися полосами поглощения и излучения. Поэтому данное сообщение посвящено результатам теоретического анализа спектральных свойств коэффициента усиления (КУ) ЛК с поляризационно-анизотропным резонатором.

Решая поставленную задачу, мы исходили из того, что, при моделировании молекулы красителя линейным осциллятором, общим для поглощения и испускания, коэффициент усиления может быть описан следующей формулой [5]:

$$K_g(t, \psi, \nu) = 3\sigma_{em}(\nu) \iint n_2(t, \theta, \varphi) \sin\theta \cos^2\xi \, d\theta \, d\varphi - 3\sigma_{ab}(\nu) \iint n_1(t, \theta, \varphi) \sin\theta \cos^2\xi \, d\theta \, d\varphi, \quad (1)$$

где t – время; ν – частота; ψ – угол, определяющий направление вектора поляризации потока излучения в лабораторной системе координат; θ и φ – сферические координаты направления ориентации оси осциллятора; $n_1(t, \theta, \varphi)$ и $n_2(t, \theta, \varphi)$ – функции распределения молекул по ориентациям в основном и возбужденном состояниях соответственно; $\sigma_{em}(\nu)$ и $\sigma_{ab}(\nu)$ – сечения излучения и поглощения молекулы; ξ – угол между молекулярным осциллятором и электрическим вектором компоненты излучения:

$$\cos\xi = \sin\theta \sin\varphi \sin\psi + \cos\theta \cos\psi.$$

При записи (1) использовалась упрощенная схема двух электронных энергетических уровней молекулы: основного, с плотностью населенности $n_1(t, \theta, \varphi)$, и первого синглетного возбужденного, с плотностью населенности $n_2(t, \theta, \varphi)$. Процесс генерации ЛК в этом приближении описывался системой обобщенных кинетических уравнений:

$$dU(t, \psi, \nu)/dt = (cl/L) U(t, \psi, \nu) [K_g(t, \psi, \nu) - K_l(\psi, \nu)] + G(t, \psi, \nu); \quad (2a)$$

$$dn_2(t, \theta, \varphi)/dt = W(t) n_1(t, \theta, \varphi) - n_2(t, \theta, \varphi) \times [\tau_s^{-1} \int 3 \sigma_{em}(\nu) \int U(t, \psi, \nu) \cos^2\xi(\psi) \, d\psi \, d\nu] + n_1(t, \theta, \varphi) \int 3 \sigma_{ab}(\nu) \int U(t, \psi, \nu) \cos^2\xi(\psi) \, d\psi \, d\nu; \quad (2b)$$

$$n_2(t, \theta, \varphi) + n_1(t, \theta, \varphi) = N/4\pi, \quad (2в)$$

где $U(t, \psi, \nu)$ – плотность фотонов излучения; c – скорость света; l – длина активной среды; L – длина резонатора; K_l – коэффициент потерь для ψ -компоненты излучения; $W(t)$ – скорость накачки; τ_s – время жизни возбужденного состояния; N – концентрация молекул в растворе; $G(t, \psi, \nu)$ – мощность люминесценции единицы объема раствора вдоль оси резонатора.

Далее задача решалась в стационарном приближении. При этом предполагалось, как обычно, что $dn_2(t, \varphi, \theta) = 0$, а установившаяся генерация происходит на компоненте с $\psi = 0$, и в течение импульса для этой компоненты выполняется следующее условие:

$$K_g(0, \nu_g) = K_l(0, \nu_g). \quad (3)$$

Следовательно,

$$\begin{cases} U_d = U(0, \nu_g) \neq 0, \\ U(\psi \neq 0, \nu = \nu_g) = 0 \end{cases}$$

и тогда (2б) с учетом (2в) принимает вид

$$(N/4\pi) [W + 3c \sigma_{ab}(v_g) \cos^2 \theta] - n_2(\theta, \varphi) \times \\ \times \{W + \tau_s^{-1} + 3c [\sigma_{ab}(v_g) + \sigma_{em}(v_g)] U_g \cos^2 \theta\} = 0. \quad (4)$$

Допустим, что $3c \sigma_{ab}(v_g) \cos^2 \theta \ll W \ll \tau_s^{-1}$. Тогда

$$n_2(\theta, \varphi) = W N \tau_s / 4\pi [1 + 3 \tau_s c \sigma_{em}(v_g) U_g \cos^2 \theta]. \quad (5)$$

Подставив (5) в (1) и выполнив интегрирование, получим

$$K_g(0, \nu) = 3 W N \sigma_{em}(\nu) \tau_s [1 - (\arctg \sqrt{a}) / \sqrt{a}] / a - \\ - N \sigma_{ab}(\nu); \quad (6)$$

$$K_g(\pi/2, \nu) = 3 W N \sigma_{em}(\nu) \tau_s (\arctg \sqrt{a}) / 2 \sqrt{a} - \\ - [K_g(0, \nu) + 3 N \sigma_{ab}(\nu)] / 2, \quad (7)$$

где $a = 3c \sigma_{em}(v_g) U_g \tau_s^{-1}$ – отношение вероятности вынужденных переходов к вероятности спонтанных переходов. Величину a можно оценить, воспользовавшись тем, что из условия (3) следует соответствующее уравнение:

$$[1 - (\arctg \sqrt{a}) / \sqrt{a}] / a = [N \sigma_{ab}(v_g) + \\ + K_g(0, v_g)] / 3 W N \sigma_{em}(v_g) \tau_s \equiv A(v_g).$$

Полное представление о характере коэффициента усиления даст соотношение

$$K_g(\psi, \nu) = K_g(0, \nu) \cos^2 \psi + K_g(\pi/2, \nu) \sin^2 \psi. \quad (8)$$

Чтобы при помощи (6), (7) и (8) рассчитать зависимости КУ от φ и ν , проанализировать, как они меняются при изменении параметров ЛК, необходимо еще знать частоту генерации ν_g . В связи с этим рассмотрим отдельно два режима работы ЛК: с широкополосным резонатором и с дисперсионным резонатором.

Для определения ν_g ЛК с широкополосным резонатором воспользуемся тем, что генерация в этом случае происходит на частоте, при которой выполняется условие

$$dK_g(0, \nu_g) / d\nu = 0. \quad (9)$$

Совместно с (3) и (1) это условие позволяет записать систему уравнений, из которых определяется ν_g :

$$3 \sigma_{em}(v_g) \iint n_2(\theta, \varphi) \sin \theta \cos^2 \theta d\theta d\varphi - N \sigma_{ab}(v_g) = \\ = K_g(0, v_g);$$

$$\iint n_2(\theta, \varphi) \sin \theta \cos^2 \theta d\theta d\varphi (d\sigma_{em} / d\nu) - N (d\sigma_{ab} / d\nu) = 0. \quad (10)$$

При этом для контуров $\sigma_{em}(\nu)$ и $\sigma_{ab}(\nu)$ можно воспользоваться аппроксимациями [6]:

$$\sigma_{em}(\nu) \approx \sigma_{em}^{\max} \exp \{-\ln 2 [2(\nu - \nu_0^f) / \Delta\nu]^2\},$$

$$\sigma_{ab}(\nu) \approx \sigma_{em}(\nu) \exp [h(\nu - \nu_\infty) / kT], \quad (11)$$

где σ_{em}^{\max} – максимальное значение $\sigma_{ab}(\nu)$; ν_0^f – частота максимума $\sigma_{em}(\nu)$; $\Delta\nu$ – полуширина контура $\sigma_{em}(\nu)$; h – постоянная Планка; ν_{00} – частота чисто электронного перехода; k – постоянная Больцмана; T – температура. Решение системы (10) с использованием аппроксимации (11) дает

$$\nu_g = \{[h/kT + (8 \nu_0^f \ln 2) / (\Delta\nu) + 1 / \Delta\nu] - \\ - \{[h/kT - (8 \nu_0^f \ln 2) / (\Delta\nu)^2 + 1 / \Delta\nu^2]^2 - \\ - (16 \ln 2) [h\nu_{00} / kT + (4 \nu_0^f \ln 2) / (\Delta\nu)^2 + \\ + \nu_0^f / \Delta\nu + \ln(K_g(0, \nu_g) kT 8 \ln 2) / N \sigma_{em} h \Delta\nu + \\ + 1] / (\Delta\nu)^2\}^{1/2}\} (\Delta\nu)^2 / 8 \ln 2. \quad (12)$$

При выводе (12) сделано допущение, что $(\nu_0^f - \nu) / \Delta\nu < 1$. Формулы (6)–(8) и (12) позволяют рассчитать $K_g(\psi, \nu)$ непосредственно, проанализировав тем самым характер усиления среды. Соответствующий анализ был проделан и выявил, как ожидалось, наличие анизотропии КУ, однако в отличие от одночастотного приближения выяснилось, что максимальное значение $K_g(\psi, \nu)$ достигается на частоте $\nu_{\max} \neq \nu_g$. Причем для каждой ψ -компоненты значение ν_{\max} свое. Частоту ν_{\max} можно найти из условия $dK_g(\psi, \nu) / d\nu = 0$. Используя (6)–(8) и аппроксимации (11), находим

$$\nu_{\max}(\psi) \approx \left[\ln \frac{F(\psi) kT 8 \ln 2}{h \Delta\nu} + \frac{h\nu_{00}}{kT} + \frac{\nu_0^f}{\Delta\nu} - 1 \right] \left(\frac{h}{kT} + \frac{1}{\Delta\nu} \right)^{-1}, \quad (13)$$

где

$$F(\psi) = 3 W \tau_s \{A(v_g) \cos^2 \psi + [B(v_g) - A(v_g)] / 2\};$$

$$B(v_g) = (\arctg \sqrt{a}) / \sqrt{a}.$$

Частотную зависимость анизотропии КУ, а иными словами, дихроизм коэффициента усиления, наглядно демонстрируют зависимости $\nu_{\max}(\psi)$ и $K_g(\psi, \lambda_{\max}) / K_g(0, \lambda_g)$, приведенные на рис. 1. Здесь и далее имеется в виду, что $\lambda = c / \nu$. Они рассчитаны для лазера на родамине 6Ж, при этом использовались следующие значения молекулярных параметров: $\sigma_{em}^{\max} = 1,85 \cdot 10^{-16} \text{ см}^2$; $\tau_s = 7,4 \text{ нс}$; $\nu_{00} = 5,45 \cdot 10^{14} \text{ Гц}$; $\nu_0^f = 5,26 \cdot 10^{14} \text{ Гц}$; $\Delta\nu = 8 \cdot 10^{13} \text{ Гц}$. Расчеты выполнялись для двух различных скоростей накачки и двух значений параметра $K_g(0, \nu_g) / N$, чтобы продемонстрировать зависимость эффекта дихроизма от добротности резонатора и скорости накачки. Из рис. 1 видно, что частоты максимумов коэффициентов усиления для каждого из ψ различны и существенно отстроены от ν_g . Максимальный сдвиг ν_{\max} возникает

для $\psi = \pi/2$. При этом уменьшение потерь резонатора или увеличение скорости накачки увеличивают сдвиг ν_{\max} и анизотропию коэффициента усиления.

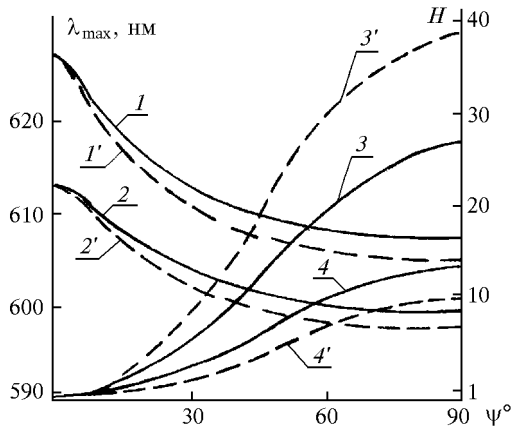


Рис. 1. Широкополосный резонатор. Зависимость λ_{\max} (1, 1') и (2, 2'), H (3, 3') и (4, 4') от ψ . (1, 1') - $K/N = 10^{-20} \text{ см}^2$; (2, 2'), (4, 4') - $K/N = 10^{-19} \text{ см}^2$; (1-4) - $W = 3 \cdot 10^6 \text{ с}^{-1}$; (1'-4') - $W = 7 \cdot 10^6 \text{ с}^{-1}$

Все вышесказанное относится к общему случаю, когда спектры поглощения и испускания красителя перекрываются, т.е. $\sigma_{ab} \neq 0$. Если же такого перекрытия нет, то, как показали расчеты, частотная зависимость анизотропии не возникает, а значит, нет и дихроизма КУ. В этом случае существует лишь анизотропия КУ, охарактеризовать которую можно, по аналогии со степенью поляризации, степенью анизотропии D , определив последнюю как

$$D = \frac{K_g(\pi/2, \nu) - K_g(0, \nu)}{K_g(\pi/2, \nu) + K_g(0, \nu)}$$

Тогда

$$D = \frac{3\beta \arctg \sqrt{a/\sqrt{a}-3}}{3\beta \arctg \sqrt{a/\sqrt{a}+1}} \quad (14)$$

где $\beta = W/W_t$ - превышение скорости накачки W над пороговой W_t . Видно, что степень анизотропии КУ зависит от величины превышения накачкой порогового значения. График $D(\beta)$ приведен на рис. 2, из которого видно, что с увеличением превышения порога степень анизотропии КУ растет.

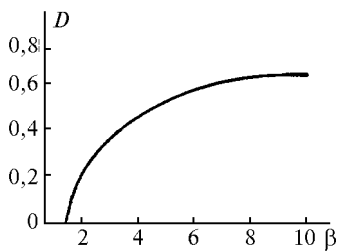


Рис. 2. Зависимость степени анизотропии D от величины превышения скорости накачки β при $\sigma_{ab} = 0$

Теперь рассмотрим ЛК с дисперсионным резонатором. В этом случае частота генерации ν_g задается помещенным в резонатор дисперсионным элементом и в общем случае не совпадает с частотой максимума коэффициента усиления для генерирующейся поляризационной моды $\nu_{\max}(\psi = 0)$. Поэтому для анализа характера $K_g(\psi)$ в этом режиме пригодны те же формулы (6)-(8) и (13), но с учетом того, что ν_g уже не зависит от параметров лазера, а задана произвольно.

Расчеты показали, что поведение $K_g(\psi, \nu)$ для ЛК с дисперсионным и широкополосным резонаторами сходно. В частности, существует дихроизм КУ. Главным отличием является то, что помимо зависимости от добротности резонатора и скорости накачки возникает зависимость эффекта и от частоты настройки дисперсионного резонатора. Это наглядно демонстрируют рис. 3 и 4.

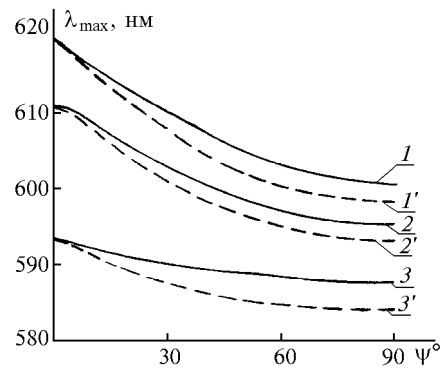


Рис. 3. Дисперсионный резонатор. Зависимость длины волны максимума КУ от ψ для различных λ_g : (1, 1') - $\lambda_g = 615 \text{ нм}$; (2, 2') - $\lambda_g = 600 \text{ нм}$; (3, 3') - $\lambda_g = 585 \text{ нм}$; (1, 3) - $W = 3 \cdot 10^6 \text{ с}^{-1}$; (1'-3') - $W = 7 \cdot 10^6 \text{ с}^{-1}$

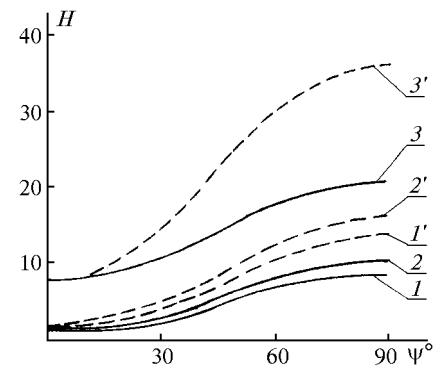


Рис. 4. Дисперсионный резонатор. Зависимость H от ψ для различных λ_g : (1, 1') - $\lambda_g = 615 \text{ нм}$; (2, 2') - $\lambda_g = 600 \text{ нм}$; (3, 3') - $\lambda_g = 585 \text{ нм}$

На рис. 3 приведены зависимости $\lambda_{\max}(\psi)$, рассчитанные для трех различных λ_g лазера на родамине 6Ж и двух разных скоростей накачки. При этом предполагалось $K_t(0, \nu_g)/N = 10^{-20} \text{ см}^2$. Как и для ЛК с широкополосным резонатором, λ_{\max} с увеличением ψ укорачивается таким образом, что всегда

$\lambda_{\max}(\pi/2) < \lambda_{\max}(0)$. Однако это укорочение λ_{\max} различно для различных длин волн настройки резонатора λ_g , уменьшаясь при перестройке на коротковолновое крыло диапазона генерации, что связано, как и весь эффект дихроизма КУ, с величиной $\sigma_{ab}(\lambda)$. То же можно сказать и о величине анизотропии КУ, которую демонстрируют зависимости $K_g(\psi, \lambda_{\max})/K_g(0, \lambda_g)$ для различных λ_g , приведенные на рис. 4.

Таким образом, на основании проведенного анализа можно сделать следующие выводы. В активной среде ЛК, генерирующего поляризованное излучение, при наличии в ней перепоглощения излучения генерации невозбужденными молекулами, возникает дихроизм коэффициента усиления. Характеризующие этот эффект величина анизотропии КУ и частотный сдвиг максимума КУ для каждой из ψ -компонент зависят от добротности резонатора и скорости накачки. Это справедливо как для ЛК с широкополосным резонато-

ром, так и с дисперсионным резонатором. Для ЛК с дисперсионным резонатором добавляется также зависимость эффекта дихроизма от длины волны настройки резонатора. При отсутствии в среде перепоглощения частотная зависимость анизотропии КУ не возникает, что означает отсутствие дихроизма в этом случае.

1. Ратнер А.М. // Квантовая электроника. Киев, 1967. Вып. 2. С. 91–105.
2. Николаев С.В., Пожар В.В. Особенности формирования поляризационных характеристик лазеров на красителях с ламповой накачкой. Харьков, 1995. 21 с. (Препринт/ИРЭ НАН Украины, № 5).
3. Николаев С.В., Пожар В.В. // Оптика атмосферы и океана. 1995. Т. 8. № 11. С. 1–3.
4. Morgan F.I., Dugan H. // Appl. Opt. 1979. V. 18. № 24. P. 4112–4115.
5. Пикулик Л.Г., Ярошенко О.И. // Журн. прикл. спектр. 1977. Т. 21. № 1. С. 53–59.
6. Тихонов Е.А., Шпак М.Т. Нелинейные оптические явления в органических соединениях. Киев: Наукова думка, 1979. 384 с.

Институт радиофизики и электроники НАН Украины,
г. Харьков

Поступила в редакцию
9 октября 1997 г.

S.V. Nikolaev, V.V. Pozhar. The Gain Dichroism of Dye Lasers With Polarized Radiation.

The gain properties of the isotropically pumped dye lasers with polarization-anisotropic resonators were investigated theoretically. In stationary approximation, the gain of spectral and polarization characteristics of dye lasers both with wide-band and dispersion resonators were calculated. It is shown that the gain anisotropy, arisen under generation of the polarized radiation, has a frequency, that is the gain possesses dichroism. It is revealed that this effect is caused by overlapping of radiation and absorption bands of the dye and depends on the laser parameters. Moreover, the gain dichroism dependence on the generation frequency was found for a narrow-band tunable dye laser.