

А.К. Сергеев, Д.Н. Филинов, Р.Т. Кузнецова, Т.Н. Копылова, Е.Н. Тельминов

ИЗМЕРЕНИЕ КОЭФФИЦИЕНТА УСИЛЕНИЯ ЛАЗЕРНО-АКТИВНЫХ СРЕД НА ОСНОВЕ КРАСИТЕЛЕЙ

Сибирский физико-технический институт им. В.Д. Кузнецова, г. Томск

Поступила в редакцию 9.09.99 г.

Предложена методика измерения коэффициента усиления для лазерно-активных сред на основе органических соединений в условиях мощной накачки. Измерены коэффициенты усиления замещенных пиридилкоксазола 4РyPO, 4РyPO-N(CH₃)₂, 4РyPO-OCH₃ и замещенного *para*-терфенила ЛОС-1. Проведено исследование коэффициента усиления и кпд в зависимости от плотности мощности излучения накачки.

Введение

Одной из проблем создания мощных лазеров на основе красителей является уменьшение коэффициента полезного действия при высоких интенсивностях накачки [1–4]. Так как коэффициент усиления $K_{yc}^0 = n_1 \sigma_{10}(\lambda_r)$, то его непосредственное измерение в зависимости от плотности мощности накачки позволяет судить о процессах, происходящих в молекуле в этих условиях.

Обычно применяемый для лазерных красителей метод Шенка позволяет измерять K_{yc}^0 при плотностях мощности < 1 МВт/см², когда усиление сигнала, равное отношению I/I_0 (где I_0 – интенсивность сигнала на входе, I – на выходе усиливающей среды), растет линейно с накачкой [5–6]. При высоких плотностях мощности накачки в средах, характеризующихся высоким коэффициентом усиления, нарушается экспоненциальная зависимость (I/I_0) от длины активной зоны, что делает невозможным применение метода Шенка. В общем случае необходимо учитывать зависимость коэффициента усиления от интенсивности усиливаемого потока. Так, для двухуровневой системы зависимость коэффициента усиления от интенсивности потока принимает вид [7]:

$$K_{yc} = K_{yc}^0 / [1 + \alpha_{ij} u_{ij}(I)] \quad (1)$$

где K_{yc} – коэффициент усиления мощного потока; α_{ij} – параметр нелинейности; u_{ij} – плотность вынуждающего излучения для лазерных уровней ij . При малых потоках вынуждающего излучения K_{yc} равен K_{yc}^0 .

Методика определения K_{yc}^0

При разработке метода измерения K_{yc}^0 за основу взят метод калиброванных потерь [8], в основе которого лежит представление о K_{yc}^0 как об отрицательных потерях. Методика измерения заключается в следующем: в плоскопараллельный резонатор вносятся калиброванные потери вплоть до срыва генерации. В момент срыва генерации полные потери (внесенные, собственные, потери на выход излучения из резонатора) равны коэффициенту усиления среды. Для активных сред, характеризующихся слабым усилением, таким, что можно считать закон развития усиления экспоненциальным на всей длине активной среды (т.е. $K_{yc} = K_{yc}^0 = \text{const}$), пороговое условие генерации

на всей длине активной среды (т.е. $K_{yc} = K_{yc}^0 = \text{const}$), пороговое условие генерации

$$K_{yc}^0 - \rho = \frac{1}{2L} \ln (R_1 R_2 T^2)^{-1}, \quad (2)$$

где ρ – собственные потери; L – длина активной среды; T – коэффициент пропускания внесенных потерь; R_1 и R_2 – коэффициенты отражения зеркал резонатора.

Активные среды на основе органических соединений характеризуются высоким усилением, что приводит к уменьшению коэффициента усиления в зависимости от длины активной зоны по мере роста интенсивности светового потока. Для описания процесса усиления в такой среде предложена модель, представленная ниже.

Пусть в инвертированной среде в точке $L = 0$ происходит усиление потока I . Обозначим через L_0 максимальную длину активной зоны, на которой действует экспоненциальный закон усиления, т.е. выполняется интегральный закон Бугера:

$$I(L_0) = I(0) e^{(K_{yc}^0 - \rho)L_0}. \quad (3)$$

Будем считать, что в объеме активной среды длиной L_0 излучили все возбужденные молекулы, т.е. «снята» вся инверсная населенность. Тогда интенсивность излучения после прохождения следующего слоя длиной L_0 будет равной $I(L_0)$, т.е. для излучения, прошедшего слой $2L_0$, можно записать

$$I(2L_0) = 2I(0) e^{K_{yc}^0 L_0} e^{-2\rho L_0}. \quad (4)$$

А для всей длины активной зоны L

$$I(L) = I(0) e^{K_{yc}^0 L_0} (L/L_0) e^{-2\rho L}. \quad (5)$$

Таким образом, пороговое условие генерации для излучения, совершившего полный обход резонатора с внесенными потерями, будет иметь вид

$$e^{K_{yc}^0 L_0 - \rho L} (R_2 + 1) (L/L_0) T^2 R_1 = 1; \quad (6)$$

$$K_{yc}^0 = (-\ln \left[\frac{L}{L_0} T^2 (R_2 + 1) R_1 \right] + 2\rho L) / L_0. \quad (7)$$

Для большинства органических соединений в условиях генерации $\rho \ll K_{yc}^0$. Работая в области длин активной зоны таких, что член $2\rho L/L_0 \ll K_{yc}^0$, для упрощения преобразований обозначим через $K_0 = K_{yc}^0 - 2\rho L/L_0$. Тогда рабочая формула приобретает вид

$$K_0 = (1/L_0) \ln(L/L_0) T^2 (R_2 + 1) R_1. \quad (8)$$

Для нахождения неизвестного параметра L_0 рассмотрим случай $L = L_0$. При этом должны работать две модели усиления излучения: модель, основанная на интегральном законе Бугера (т.е. $I(L)$ меняется по экспоненциальному закону), и вышеописанная модель. Приравнявая пороговые условия генерации двух моделей для генератора с длиной активной среды, равной L_0 , получаем

$$(1/2L_0) \ln R_1 R_2 T^2 = (1/L_0) \ln (R_2 + 1) R_1 T^2. \quad (9)$$

Решая (9), получим соотношение T и R

$$T_0 = \sqrt{R_1 R_2 / [(R_2 + 1) R_1]}, \quad (10)$$

при котором в точке $L = L_0$ работают две модели. Таким образом, появляется возможность экспериментального определения L_0 при заданных R_1 и R_2 .

Методика определения L_0 : в плоскопараллельный резонатор, образованный зеркалами с коэффициентами отражения R_1 и R_2 , вносятся потери T_0 , равные (10). Путем изменения (уменьшения) длины активной зоны добиваются срыва генерации. В момент срыва генерации длина активной зоны равна L_0 .

Методика определения K_0 : в плоскопараллельный резонатор, образованный зеркалами R_1 , R_2 , с длиной активной зоны $L > L_0$, вносятся пороговые потери $T_{пор}$ (нейтральные светофильтры) вплоть до срыва генерации. Экспериментально полученные для данной плотности мощности накачки $T_{пор}$ и L_0 подставляются в рабочую формулу (8).

Экспериментальная установка

На рис. 1 изображена схема экспериментальной установки. Исследуемый раствор помещается в прямоугольную кварцевую кювету длиной 4, толщиной 0,5 и высотой 2 см. Использовались цилиндрические линзы из кварца с фокусными расстояниями $F = 250$ и 450 мм. Зеркала R_1 и R_2 образуют резонатор.

Для изменения длины возбужденной зоны использовались набор прямоугольных диафрагм различной длины ($L = 0,57 \div 2,04$ см) и щель с переменной длиной ($L = 0 \div 0,4$ см с шагом 0,001 см). Излучение накачки было сфокусировано так, что, несмотря на изменения длины активной зоны, плотность мощности накачки оставалась постоянной. В качестве ослабителей накачки использовались нейтральные светофильтры.

Накачка производилась эксимерным ХеСl*-лазером с характеристиками: $\lambda_{ген} = 308$ нм; $E_{ген} = 20\text{--}25$ мДж; $\tau_{ген} = 10$ нс.

Измерение энергии накачки и генерации проводилось с помощью высокочувствительной калориметрической головки КТП-2 с нановольтметром Ф-138, откалиброванным по ИМО-2Н с точностью $\pm 1\%$. Фокусировка позволяет получить интенсивность возбуждения до 70 МВт/см².

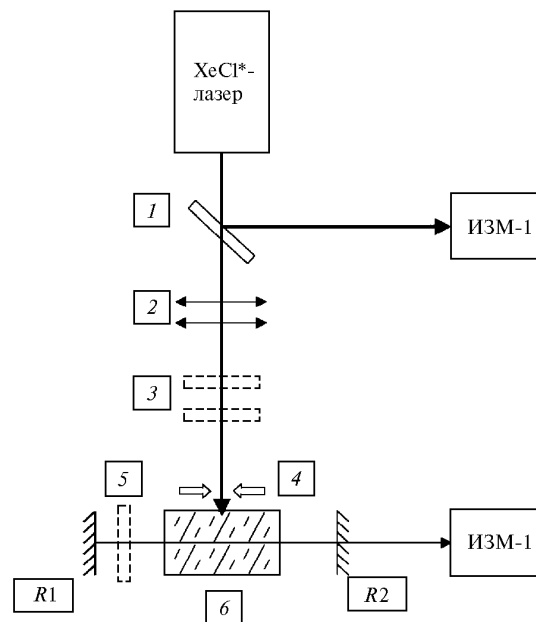


Рис. 1. Схема экспериментальной установки: 1 – делительная пластина; 2 – цилиндрические линзы; 3 – ослабители; 4 – диафрагма; 5 – вносимые потери; 6 – кювета с красителем; R_1 , R_2 – зеркала резонатора; ИЗМ-1,2 – измерители энергии

Объекты исследования и экспериментальные результаты

Измерения проводились для лазерно-активных сред на основе молекул, отличающихся строением и совокупностью протекающих в них процессов, определяющих различие их спектральных и генерационных свойств. Структурные формулы и характеристики исследованных соединений приведены в таблице.

ЛОС-1 – производное *пара*-терфенила, соединение, идеально подходящее для преобразования излучения ХеСl*-лазера в перестраиваемое излучение в УФ-области, так как накачка осуществляется в максимум длинноволновой полосы поглощения, а квантовый выход флуоресценции равен 0,96. Коэффициент полезного действия генерации в нашей схеме возбуждения составляет 35% с $\lambda_{max} = 375$ нм.

Замещенные пиридилоксазола: 4РyPO – известный лазерный краситель для области 400 нм и два его производных: 4РyPO–ОСН₃, 4РyPO–N(CH₃)₂–флуоресцируют и генерируют лазерное излучение менее эффективно по сравнению с ЛОС-1. Квантовый выход флуоресценции равен 0,9; 0,8 и 0,3 соответственно, и более низкие значения кпд генерации даны в таблице. Для молекулы 4РyPO–N(CH₃)₂ установлено, что в этанольных растворах при возбуждении образуется ТИСТ-состояние, т.е. происходит структурная перестройка, приводящая к аномально большому стоксову сдвигу и ухудшению излучательных свойств [9].

Различие спектрально-люминесцентных и генерационных свойств данных соединений должно отразиться на величине коэффициента усиления. Экспериментальные значения K_0 , коррелирующие с эффективностью генерации, позволили бы говорить о чувствительности и достоверности предложенной методики.

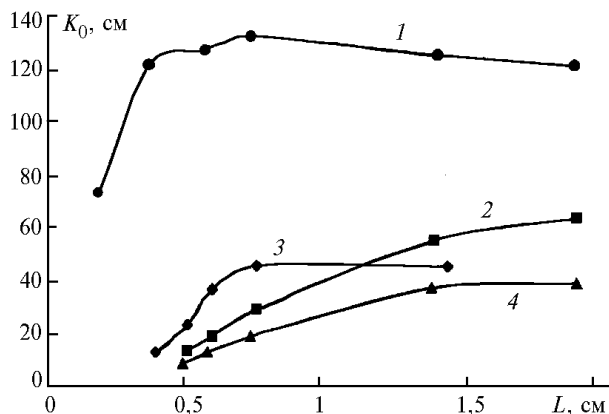


Рис. 2. Зависимость коэффициента усиления от длины активной зоны для этанольных растворов: 1 – ЛОС-1, концентрация 0,5 ммоль/л; 2 – 4PyPO, концентрация 0,5 ммоль/л; 3 – 4PyPO(OCH₃), концентрация 2 ммоль/л; 4 – 4PyPO – N(CH₃)₂, концентрация 0,5 ммоль/л

Результаты исследования зависимости K_0 от длины возбужденной зоны L представлены на рис. 2. Для всех соединений с ростом L наблюдается рост коэффициента усиления до некоторого значения L , затем рост прекращается, и коэффициент усиления остается постоянным. Такое поведение K_0 может быть связано с ростом потерь при уменьшении L , так как, в действительности экспериментально определяется величина $K_0 = K_{ус}^0 - 2(L/L_0) \rho$. Уменьшение длины активной зоны при неизменной базе резонатора приводит к увеличению одной из составляющих собственных потерь – потерь на

выход излучения через боковые поверхности резонатора. Так как потери на выход излучения через боковые поверхности резонатора равны $\sim 1/L$, то при достаточно больших L потери малы и слабо меняются с увеличением L . Таким образом, в области длин активной зоны, где K_0 не меняется, можно говорить о малости собственных потерь по сравнению $K_{ус}^0$ и использовать K_0 как внутримолекулярную характеристику активной среды.

Из таблицы видно, что изменения экспериментально измеренных коэффициентов усиления соответствуют изменению значений кпд и спектрально-люминесцентных характеристик исследованных соединений. Так для раствора ЛОС-1, имеющего максимальный кпд, измеренное значение K_0 , равное 125 см^{-1} , также максимально. Следует отметить, что для ЛОС-1 предельный коэффициент усиления, равный $n\sigma_{21}$ (n – концентрация раствора), т.е. определенный из условия, что все молекулы находятся в возбужденном состоянии, максимально близок к измеренному K_0 , по сравнению с другими соединениями, что говорит о малости внутримолекулярных потерь, уводящих молекулы с лазерного уровня. Для раствора 4PyPO эти значения различаются практически в два раза. Для 4PyPO–(OCH₃) и 4PyPO–N(CH₃)₂ измеренный K_0 более существенно отличается от предельного коэффициента усиления и экспериментально измеренного K_0 согласуется с уменьшением кпд генерации и связано с наличием существенных внутримолекулярных потерь. Потери могут быть обусловлены либо уходом молекул в триплетные состояния, либо структурной (пространственной) перестройкой молекул в возбужденном состоянии, как это показано для 4PyPO–N(CH₃)₂ [9].

Спектрально-люминесцентные характеристики исследованных соединений

Объекты исследования	Характеристики длинноволнового поглощения			Характеристики флуоресценции		$A_{21} \cdot 10^8, \text{ с}^{-1}$	$\sigma_{10} \cdot 10^{-16}, \text{ с}^{-2}$	Концентрация, ммоль/л	$K_0, \text{ см}^{-1}$ (экспериментальный)	кпд %	$K_{ус}^0, \text{ см}^{-1}$ (предельный)
	$\nu_{\text{погл}}, \text{ см}^{-1}$	$\Delta\nu_{\text{погл}}, \text{ см}^{-1}$	$\frac{\epsilon, \text{ л}}{\text{см} \cdot \text{моль}}$	$\lambda_{\text{фл}}, \text{ нм}$	$\Delta\lambda_{\text{фл}}, \text{ нм}$						
4PyPO 	31000	6000	22600	390	57	4,7	3,5	0,5	(55±10)%	16	105
4PyPON(CH ₃) ₂ 	26200	5200	21200	560	105	2,5	4,2	0,5	(40±10)%	9	126
4PyPO(OCH ₃) 	29400	5800	22400	440	72	3,25	3,0	2,0	(45±10)%	2	361
ЛОС-1 	32600	5400	44000	373	50	8,2	5,7	0,5	(125±10)%	35	172

На рис. 3 и 4 представлены зависимости K_0 и кпд для ЛОС-1 от плотности мощности накачки W соответственно. Из рисунков видно, что с ростом W до $\approx 20 \text{ МВт/см}^2$ наблюдается тривиальный рост K_0 и кпд, обусловленный увеличением инверсии. При дальнейшем

росте W значение K_0 практически не меняется. Зависимость кпд (W) носит несколько иной характер: в области высоких значений плотности мощности $W > 30 \text{ МВт/см}^2$ наблюдается некоторое уменьшение кпд. Причина этого расхождения требует дальнейших исследований.

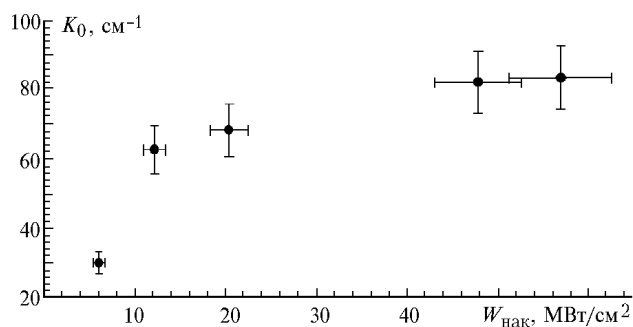


Рис. 3. Зависимость коэффициента усиления от плотности мощности накачки для этанольного раствора ЛОС-1 в концентрации $0,37 \text{ ммоль/л}$ при длине активной зоны $L = 1,44 \text{ см}$

Приведенные результаты показывают, что изменение K_0 для исследованных соединений отражает реальную физическую картину совокупности фото-физических процессов, протекающих в этих молекулах и определяющих их генерационную способность. На основе полученных результатов можно сделать вывод о применимости предложенной методики измерения коэффициента усиления с учетом ограничений, накладываемых на длину активной зоны, о которых говорилось выше.

Работа выполнена при поддержке РФФИ (гранты 98-02-03026, 98-03-32082).

1. Батице С.А., Ганжа В.А., Малевич Н.А. и др. // ЖПС. 1983. Т. 39 № 6. С. 934–936.

A.K. Sergeev, D.N. Filinov, R.T. Kuznetsova, T.N. Kopylova, and E.N. Telminov. Measurement of the Gain of the Laser-active Media Based on Dyes.

A measurement technique of the gain of laser active medium based on organic compounds is proposed. The gains of the substituted pyridyloxazole 4PyPO, 4PyPO-N(CH₃)₂, and 4PyPO-OCH₃ as well as the substituted *para*-terphenyl LOS-1 have been measured. Investigation of the gain and the efficiency dependence on the density power of pumping has been carried out.

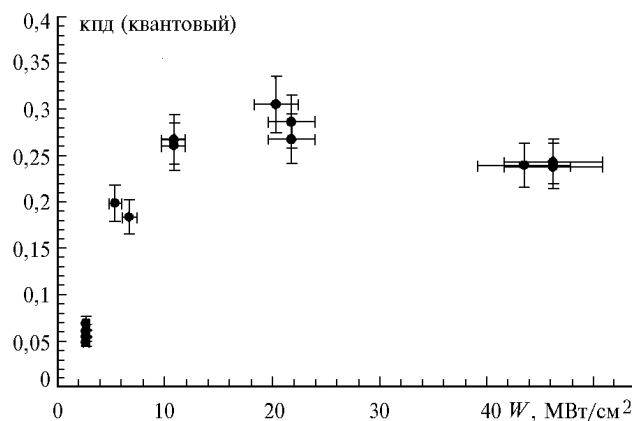


Рис. 4. Зависимость квантового коэффициента полезного действия от плотности мощности накачки для этанольного раствора ЛОС-1 в концентрации $3,7 \cdot 10^{-4} \text{ моль/л}$ при длине активной зоны $L = 1,44 \text{ см}$

2. Наровлянская Н.М., Пржонская О.В., Тихонов Е.А. // ЖТФ. 1979. Т. 49. № 8. С. 1678–1682.
3. Дегтяренко К.М., Ефремов А.М., Копылова Т.Н. и др. // Квантовая электроника. 1995. Т. 22. № 5. С. 477–478.
4. Kuznetsova R.T., Kopylova T.N., Degtyarenko K.M. et al. // Proc. SPIE. 1995 V. 2619. P. 150–155.
5. Sank C.V., Diens A. and Silfvast W.T. // Appl. Phys. Lett. 1970. V. 17. N 7. P. 307–309.
6. Mohan D., Gaur A. et. al. // J. Luminesc. V.43. P.363–368.
7. Степанов Б.И. Методы расчета оптических квантовых генераторов. Минск: Высшая школа, 1968. 268 с.
8. Хирд Г. Измерение лазерных параметров. М.: Мир, 1970. 540 с.
9. Бреусова Е.Г. Спектрально-люминесцентные и генерационные свойства замещенных оксазола: Автореф. дис. ...канд. физ.-мат. наук. Томск, СФТИ, 1999. 20 с.