

УДК 621.373.038

ДВУХЧАСТОТНЫЙ РЕЖИМ ГЕНЕРАЦИИ ЛАЗЕРА НА БИНАРНОЙ СМЕСИ КРАСИТЕЛЕЙ

А. А. Викторова, А. П. Савикин, В. Б. Цареградский

Исследуются условия существования двухполосного и однополосного режимов генерации в лазерах на бинарной донор-акцепторной смеси органических красителей. Выявлены оптимальные параметры смеси, отвечающие экстремальным значениям выходной мощности и КПД лазера.

1. На практике часто возникает необходимость сместить спектр излучения имеющихся в распоряжении исследователя лазеров в нужную область частот. Для достижения большого сдвига частоты в длинноволновый диапазон в целом ряде случаев целесообразно использовать бинарные растворы донор-акцепторных смесей органических красителей. В такой системе донор является промежуточным переносчиком энергии от лазера накачки к молекулам акцептора, а частота преобразованного излучения может перестраиваться в пределах ширины линии флуоресценции акцептора.

Требованию эффективного переноса энергии в смеси удовлетворяют красители с интенсивными линиями поглощения и флуоресценции. Такие среды уже при умеренных мощностях накачки обладают коэффициентом усиления, достаточным для возникновения генерации из-за отражения излучения на стенках кюветы [1]. При наличии внешнего резонатора условия генерации улучшаются, и поэтому двухчастотный (точнее, двухполосный) режим, когда генерация одновременно происходит на частотах флуоресценции донора и акцептора, часто сопутствует процессу преобразования частоты лазера накачки донор-акцепторной смесью красителей.

В этой связи представляется необходимым исследовать условия существования двухчастотного режима генерации в лазерах на бинарных смесях красителей и выявить оптимальные параметры смеси, отвечающие экстремальным значениям выходной мощности и КПД лазера.

2. Анализ проведем, основываясь на схеме энергетических уровней молекул красителей, представленных на рис. 1 [2, 3].

Межмолекулярный перенос энергии от донора к акцептору учтем с помощью двух доминирующих механизмов: 1) перепоглощение излучения донора акцептором — излучательный («тривиальный») механизм переноса; 2) безызлучательный резонансный перенос, обусловленный дальнедействующим (обычно диполь-дипольным) взаимодействием молекул донора с невозбужденной молекулой акцептора [4]. Ниже ограничимся случаем импульсной лазерной накачки (длительность импульса τ_n в типичной ситуации порядка 10^{-8} с), которая возбуждает молекулы донора, переводя их из S_0 - в S_1 -состояния (уровни 3, рис. 1). В этом случае можно пренебречь населенностями триплетных уровней по сравнению с синглетными, а значит, и такими процессами, как триплет-триплетное поглощение, фосфоресценция и интеркомбинационная

конверсия ($T_1 \rightarrow S_0$ -перехода). Учитывая большую скорость опустошения уровней 3 донора и акцептора из-за процесса колебательной релаксации ($\tau \sim 10^{-12}$ с), пренебрежем также населенностями уровней 3 по сравнению с населенностями уровней 1 и 2. Это позволяет представить концентрацию красителей донора и акцептора соответственно в виде $n^d = n_{S_0}^d + n_2^d$, $n^a = n_{S_0}^a + n_2^a$. Здесь $n_{S_0}^{d,a}$ — плотность населенностей S_0 -состояния донора (акцептора), $n_2^{d,a}$ — плотность населенностей уровня 2. Индексы «д» и «а» означают соответственно принадлежность величин донору и акцептору.

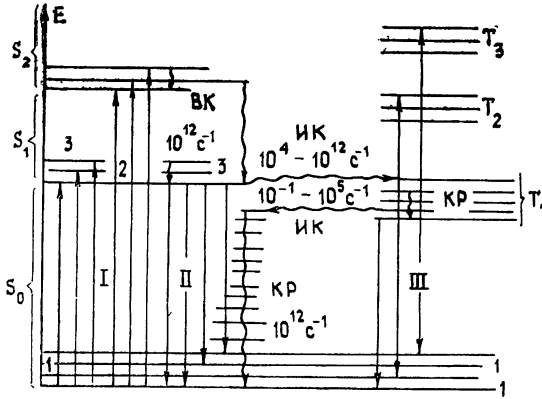


Рис. 1. Электронно-колебательные состояния для молекулы красителя; процессы возбуждения и дезактивации, скорости этих процессов; ВК — безызлучательный процесс внутренней конверсии; КР — безызлучательный процесс колебательной релаксации, ИК — безызлучательный процесс интеркомбинационной конверсии; I — произвольный уровень S_0 -состояния; 2 — невозбужденный колебательный уровень S_1 -состояния; 3 — возбужденный колебательный уровень T_1 -состояния; I — поглощение $10^{13} - 10^{16}$ с, II — флуоресценция $10^6 - 10^9$ с $^{-1}$, III — фосфоресценция $10^{-2} - 10^6$ с $^{-1}$.

Для принятой модели кинетику населенностей и числа фотонов генерируемого излучения в двухчастотном резонаторе можно описать системой уравнений:

$$\dot{n}_2^d = \sigma_n^d(\omega_n) \gamma_{32}^d \frac{I_n}{\hbar \omega_n} (n^d - n_2^d) + c \sigma_n^d(\omega_n) \frac{N(\omega_n)}{V_d} (n^a - n_2^d) - \frac{\pi^2 c^3 \varphi_d}{V^d \omega_d^2 \tau_d} f_\Phi^d(\omega_n) n_2^d N(\omega_n) - \frac{n_2^d}{\tau_n} - k(n^a - n_2^a) n_2^d; \quad (1)$$

$$\dot{N}(\omega_n) = \frac{\pi^2 c^3 \varphi_d \chi^d}{\omega_d^2 \tau_d} f_\Phi^d(\omega_n) n_2^d N(\omega_n) - c \sigma_n^d(\omega_n) N(\omega_n) (n^d - n_2^d) - \sigma_n^a(\omega_n) c N(\omega_n) (n^a - n_2^a) - \frac{N(\omega_n)}{\tau_c} + \frac{\pi^2 c^3 \varphi_d \chi^d}{\omega_d^2 \tau_d} f_\Phi^d(\omega_n) n_2^d; \quad (2)$$

$$\dot{n}_2^a = c \gamma_{32}^a \sigma_n^a(\omega_n) \frac{N(\omega_n)}{V_a} (n^a - n_2^a) - \frac{n_2^a}{\tau_a} - \frac{\pi^2 c^3 \varphi_a}{V^a \omega_a^2 \tau_a} \times \quad (3)$$

$$\times \tilde{f}_{\phi}^{a,a}(\omega_a) N(\omega_a) n_2^a + \eta_{32}^a \hbar (\tilde{n}^a - \tilde{n}_2^a) n_2^a + c \sigma_{\Pi}^a(\omega_a) \frac{N(\omega_a)}{V_a} (n^a - n_2^a) ;$$

$$\begin{aligned} \dot{N}(\omega_a) = & \frac{\pi^2 c^3 \varphi_a \chi^a}{\omega_a^2 \tau_a} f_{\phi}^a(\omega_a) n_2^a N(\omega_a) - c \sigma_{\Pi}^a(\omega_a) N(\omega_a) \times \\ & \times (n^a - n_2^a) - \frac{N(\omega_a)}{\tau_c^a} + \frac{\pi^2 c^3 \varphi_a \chi^a}{\omega_a^2 \tau_a} f_{\phi}^a(\omega_a) n_2^a. \end{aligned} \quad (4)$$

Здесь обозначено: $\omega_{д.а}$ — частоты флуоресценции соответственно молекул донора и акцептора, $N(\omega_{д.а})$ — число фотонов в моде резонатора на частотах $\omega_{д.а}$, \hbar — постоянная Планка, c — скорость света, $I_{\text{л}}$, $\omega_{\text{л}}$ — соответственно интенсивность и частота лазера накачки, $\eta_{32}^{д.а}$ — квантовый выход перехода $3 \rightarrow 2$ в молекулах красителей, $\varphi_{д.а}$ — квантовый выход флуоресценции, $\tau_{д.а}$, $\tau_c^{д.а}$ — соответственно время жизни молекул на уровне 2 и время затухания фотона в резонаторе, $f_{\phi}^{д.а}(\omega_{д.а})$ — нормированный на единицу контур спектральной линии флуоресценции, V_a — объем резонансной моды поля на частоте $\omega_{д.а}$, $\chi^{д.а}$ — отношение возбуждаемого накачкой объема красителя к объему резонансной моды поля, $\sigma_{\Pi}^{д.а}(\omega)$ — сечение поглощения на частоте ω , $k(n^a - n_2^a)$ — вероятность в единицу времени безызлучательного переноса энергии возбуждения от донора к акцептору, k — константа скорости переноса [4, 7].

3. Стационарный режим генерации рассмотрим в приближении малости спонтанного излучения в моду резонатора, полагая $\tilde{N}(\omega_{д.а}) \gg 1$. Здесь и ниже волнистая черта сверху означает стационарное значение динамической величины. Вычисления, на которых мы не останавливаемся, приводят к следующим выражениям:

$$\tilde{n}_2^d = \frac{c \sigma_{\Pi}^d(\omega_d) n^d + 1/\tau_c^d + c \sigma_{\Pi}^a(\omega_d) (n^a - \tilde{n}_2^a)}{R^d \chi^d + c \sigma_{\Pi}^d(\omega_d)}; \quad (5)$$

$$\tilde{n}_2^a = \frac{c \sigma_{\Pi}^a(\omega_a) n^a + 1/\tau_c^a}{R^a \chi^a + c \sigma_{\Pi}^a(\omega_a)}; \quad (6)$$

$$\tilde{N}(\omega_d) = V^d \frac{\left\{ \eta_{32}^d \frac{I_{\text{л}}}{\hbar \omega_{\text{л}}} \sigma_{\Pi}^d(\omega_{\text{л}}) (n^d - \tilde{n}_2^d) - \left[\frac{1}{\tau_d} + k(n^a - \tilde{n}_2^a) \right] \tilde{n}_2^d \right\}}{R^d \tilde{n}_2^d - c \sigma_{\Pi}^d(\omega_d) (n^d - \tilde{n}_2^d)}; \quad (7)$$

$$\tilde{N}(\omega_a) = V^a \frac{\left\{ \eta_{32}^a (n^a - \tilde{n}_2^a) \left[\frac{c \sigma_{\Pi}^d(\omega_d)}{V^d} \tilde{N}(\omega_d) + k \tilde{n}_2^d \right] - \frac{\tilde{n}_2^a}{\tau_a} \right\}}{R^a \tilde{n}_2^a - c \sigma_{\Pi}^a(\omega_a) (n^a - \tilde{n}_2^a)}. \quad (8)$$

$$\text{Здесь } R^{д.а} = \frac{\pi^2 c^3 \varphi_{д.а} f_{\phi}^{д.а}(\omega_{д.а})}{\omega_{д.а}^2 \tau_{д.а}}.$$

4. Проанализируем полученные решения. Условия положительности величин $(n^d - \tilde{n}_2^d)$ и $(n^a - \tilde{n}_2^a)$ эквивалентны неравенствам

$$n^d > 1/R^d \chi^d \tau_c^d; \quad (9)$$

$$\eta^a > 1/R^a x^a \tau_c^a; \quad (10)$$

$$\{R^a x^a n^a - 1/\tau_c^a\} > \frac{c \sigma_n^a(\omega_d)}{R^a x^a + c \sigma_n^a(\omega_a)} (R^a n^a x^a - 1/\tau_c^a). \quad (11)$$

Используя типичные для лазерных красителей значения

$$\begin{aligned} \tau_c^{d,a} &\approx 10^{-8} \text{ с}, \quad \tau_{d,a} \approx 5 \cdot 10^{-9} \text{ с}, \quad \varphi_{d,a} \approx 0,8, \quad \kappa^{d,a} \approx 0,2, \\ f_\phi^d(\omega_d) &\approx 2,5 \cdot 10^{-15} \text{ с}, \quad f_\phi^a(\omega_a) \approx 2,5 \cdot 10^{-15} \text{ с}, \\ \sigma_n^a(\omega_a) &< 10^{-18} \text{ см}^2, \quad \sigma_n^d(\omega_d) < 10^{-18} \text{ см}^2, \end{aligned} \quad (12)$$

из (9), (10) получим оценку нижней границы концентрации $n^{d,a} > > 10^{-7}$ моль/л. В условиях эксперимента концентрация красителей всегда превышает это значение. Считая в дальнейшем, что $n^a > > 5 \cdot 10^{-6}$ моль/л, и учитывая неравенства

$$R^d x^d \gg c \sigma_n^d(\omega_d) \quad \text{и} \quad R^a x^a \gg c \sigma_n^a(\omega_a), \quad (13)$$

которые вытекают из (12), соотношения (11), (7) и (8) перепишем в виде

$$n^d > \frac{c \sigma_n^d(\omega_d)}{R^d x^d} n^a; \quad (14)$$

$$\begin{aligned} \tilde{N}(\omega_d) &= \frac{V^d x^d}{c \sigma_n^d(\omega_d)} \left\{ \frac{J_n}{\hbar \omega_n} \eta_{32}^d \sigma_n^d(\omega_n) \left[\frac{n^d}{n^a} - \frac{c \sigma_n^d(\omega_d)}{R^d x^d} \right] - \right. \\ &\quad \left. - \left(\frac{1}{\tau_x} + k n^a \right) \frac{c \sigma_n^d(\omega_d)}{R^d x^d} \right\}; \end{aligned} \quad (15)$$

$$\tilde{N}(\omega_a) = \frac{V^a x^a}{\sigma_n^a(\omega_a)} \left\{ \eta_{32}^a \left[\frac{\tilde{N}(\omega_d)}{V^d} - \frac{k n^a}{R^d x^d} \right] \sigma_n^a(\omega_d) - \frac{\sigma_n^a(\omega_a)}{\tau_a R^a x^a} \right\}. \quad (16)$$

Как видно из полученных выражений, условия существования стационарной генерации в бинарной смеси красителей определяются следующими неравенствами:

на частоте ω_d —

$$n^d/n^a > 10^6 \sigma_n^a(\omega_d); \quad (17)$$

$$J_n \left[\frac{n^d}{n^a} - 10^{16} \sigma_n^a(\omega_d) \right] > 3 \cdot 10^4 \frac{\sigma_n^a(\omega_d)}{\sigma_n^d(\omega_n) \eta_{32}^d} (2 \cdot 10^8 + k n^a); \quad (18)$$

на частоте ω_a —

$$\left[\frac{\tilde{N}(\omega_d)}{V^d} + 4 \cdot 10^5 k n^a \right] > 10^{14} \frac{\sigma_n^a(\omega_a)}{\sigma_n^d(\omega_d) \eta_{32}^d}. \quad (19)$$

Входящие сюда величины выражены в единицах системы CGS.

Стационарный двухчастотный режим генерации в системе возможен при одновременном выполнении условий (17) — (19).

Выше мы не учитывали зависимость κ^d от концентрации донорного красителя. В действительности же с ростом n^d увеличивается коэффициент поглощения накачки, что ведет к уменьшению возбуждаемого

накачкой объема красителя. С другой стороны, с ростом n^d возрастает плотность возбужденных молекул донора. Конкуренция этих процессов обуславливает наличие оптимальной концентрации донора [7], равной

$$n_{\text{опт}}^d = 1/L \sigma_{\text{п}}^d(\omega_{\text{н}}), \quad (20)$$

где L — протяженность кюветы с красителем вдоль луча накачки. В типичных экспериментах $n_{\text{опт}}^d$ порядка $2 \cdot 10^{-4}$ моль/л. Физически (20) означает, что на размерах кюветы мощность накачки спадает в e раз. Для $n^d > n_{\text{опт}}^d$ освещаемый накачкой объем красителя меньше размеров кюветы и величина χ^d начинает зависеть от n^d [7]:

$$\chi^d \sim 1/n^d \sigma_{\text{п}}^d(\omega_{\text{н}}).$$

Как видно из (15), (16), с ростом концентрации $n_{\text{д}}$ мощность генерации на частоте $\omega_{\text{д}}$ имеет тенденцию к насыщению, на частоте же акцепторного красителя концентрационное насыщение наблюдается, если донор работает в режиме люминесценции ($\tilde{N}(\omega_{\text{д}}) = 0$) [7].

Выясним оптимальные условия преобразования частоты лазера накачки. Для этого найдем значение концентрации акцептора $n_{\text{опт}}^a$, отвечающее максимуму мощности генерации на частоте ω_a . Исследуя на экстремум выражение (16), получаем

$$n_{\text{опт}}^a = \left[\frac{I_{\text{н}} \gamma_{32}^a \sigma_{\text{п}}^a(\omega_{\text{н}}) R^d(\chi^d)^2}{\hbar \omega_{\text{н}} k c \sigma_{\text{п}}^a(\omega_{\text{д}})} n^d \right]^{1/2}. \quad (21)$$

Используя для оценок значения величин из (12) и полагая $I_{\text{н}} \approx 10^{15}$ эрг/с·см², $\sigma_{\text{п}}^a(\omega_{\text{д}}) \approx \sigma_{\text{п}}^d(\omega_{\text{н}}) \approx 10^{-16}$ см², $k \approx 10^{-8}$ см³/с [7], $\gamma_{32}^d \approx 0,9$, находим из (21), что $n_{\text{опт}}^a \approx 0,7 \cdot 10^9 (n^d)^{1/2}$. Так, если $n^d = n_{\text{опт}}^d \approx 2 \cdot 10^{-4}$ моль/л, $n_{\text{опт}}^a \approx n_{\text{опт}}^d$. В этом случае максимальны значения выходной мощности и КПД лазера.

В заключение отметим, что область существования двухчастотного режима генерации в лазере на бинарной смеси красителей определяется, как видно из (17)–(19), мощностью накачки, соотношением концентраций донорного и акцепторного красителей и условием $n^a > 5 \cdot 10^{-6}$ моль/л. Для значений величин из (12) и $\sigma_{\text{п}}^d(\omega_{\text{н}}) \approx \sigma_{\text{п}}^a(\omega_{\text{д}}) \approx 10^{-16}$ см² при $n^d \leq n_{\text{опт}}^d$ условие двухчастотной генерации сведется к неравенству

$$I_{\text{н}}(n^d/n^a - 1) > 10^{13}. \quad (22)$$

Из (22) при $I_{\text{н}} \approx 10^{15}$ эрг/см²·с следует, что $n^d/n^a > 1$; если $I_{\text{н}} \approx 10^{13}$ эрг/см²·с, то $n^d/n^a > 2$. Двухчастотная генерация возможна и при $n^d > n_{\text{опт}}^d$. В этом случае донор работает в режиме концентрационного насыщения, а условие (22) заменяется соотношением (см. (15))

$$I_{\text{н}} \left[\frac{n^d}{n^a} - \frac{0,2}{\chi^d(n^d)} \right] > 10^{13},$$

здесь $\chi^d(n^d) \leq \chi^d(n^d \leq n_{\text{опт}}^d) \approx 0,2$.

ЛИТЕРАТУРА

1. Бубеков Ю. И., Тихомиров С. А., Толсторожев Г. Б., Халиманович Д. Н. — Квантовая электроника, 1977, 4, с. 461.
2. Паркер С. Фотолюминесценция растворов. — М.: Мир, 1972
3. Шефер Ф. П. Лазеры на красителях. — М.: Мир, 1976, с. 35
4. Агранович В. М., Галанин М. Д. Перенос энергии электронного возбуждения в конденсированных средах. — М.: Наука, 1978 — Гл II

5. Speiser S. — Appl. Phys. — 1979, 19, p. 165.

6. Lin Chinlon, Dienes A. — J. Appl. Phys. — 1973, 44, p. 5050.

7. Викторова А. А., Савикин А. П., Цареградский В. Б. — Изв вузов — Радиофизика, 1981, 24, № 11, с. 1332

Горьковский государственный
университет

Поступила в редакцию
19 марта 1981 г.

TWO FREQUENCY GENERATION REGIME OF A BINARY DYE MIXTURE LASER

A. A. Viktorova, A. P. Savikin, V. B. Tsaregradskij

Existence conditions are investigated of two-band and one-band generation regimes in binary donor-acceptor organic dye lasers. Optimal parameters of the dye is found out which satisfies experimental values of the output power and the efficiency of the laser.

ИНФОРМАЦИЯ

ГЕОМАГНЕТИЗМ И АЭРОНОМИЯ, т. XXI, № 3, 1981 г.

Аннотации статей, представляющих интерес для читателей «Радиофизики»

Н. А. Лотова, И. В. Чашей. Распределение скоростей в картине мерцаний и струйная структура солнечного ветра

Исследована связь дисперсионной зависимости дрейфовой скорости мерцаний $V(\omega)$ с распределением скоростей солнечного ветра $\varphi(v)$. Рассмотрен случай произвольного распределения $\varphi(v)$. Исследованы особенности найденных распределений скоростей

В. В. Васьков, В. В. Вязников, С. Ф. Голян, Ю. В. Груздев, А. В. Гуревич, В. Ю. Ким, Л. А. Лобачевский, В. В. Мигулин, В. А. Панченко, М. С. Петров, В. П. Полиматиди, О. С. Сергеенко, В. И. Ситников, И. П. Харьков, И. С. Шлюгер, К. И. Юрин. Экспериментальное исследование эффектов самовоздействия мощных радиоволн на гирочастоте электронов в F -области ионосферы доплеровским методом

Приведены результаты экспериментальных исследований и обсуждаются наблюдаемые эффекты аномального поглощения радиоволн, а также эффект значительного (до 7 Гц) доплеровского уширения отраженного сигнала при падении на F -слой ионосферы мощных радиоволн на гирочастоте электронов. Аномальное поглощение связано с параметрическим возбуждением плазменных колебаний. Доплеровское уширение радиосигнала свидетельствует о возникновении в области воздействия мощной волны искусственных неоднородностей, движущихся относительно уровня отражения со скоростями порядка сотен m/c

О. В. Капустина, Г. А. Михайлова, Ю. М. Михайлов. Особенности амплитудных спектров свистящих атмосфериков на частотах ниже 1 кГц (ИСЗ «Интеркосмос-5» и «Интеркосмос-14»)

Приведены амплитудные спектры свистящих атмосфериков, зарегистрированных во внешней ионосфере на высотах 400—500 и 1000 км в дневное и ночное время. Кратко описана методика наблюдения и цифровой обработки первичных магнитофонных записей сигналов. Наблюдаемые спектры качественно согласуются с теоретическими свойствами функции прохождения КНЧ-волн через ионосферу и экспериментально наблюдаемыми спектрами атмосфериков в приземном волноводе.

(Окончание см. с. 32)