

# Влияние наведенных потерь на спектральную зависимость эффективности генерации родамина 6Ж при микросекундной когерентной накачке

В.В.Тарковский, С.С.Ануфрик, В.Ю.Курстак

*Установлено влияние наведенных накачкой потерь в активной среде лазера на растворе родамина 6Ж на спектральную зависимость эффективности (КПД) генерации при когерентной накачке излучением микросекундной длительности. Теоретически и экспериментально показано, что основой индуцированных накачкой потерь является нелинейная рефракция и термооптические неоднородности активной среды, формирующие отрицательную тепловую линзу, дефокусирующее действие которой снижает эффективность генерации лазера. Показано, что наведенное поглощение излучения в канале возбужденных синглетных и триплетных уровней молекул красителя не вносит заметного вклада в изменение эффективности генерации. Тепловые потери, индуцируемые излучением накачки в максимуме полосы поглощения родамина 6Ж, проявляются в большей степени при значительном превышении пороговой плотности излучения накачки ( $\gamma \geq 5$ ). Установлено, что достижение максимального КПД генерации лазеров на красителях при микросекундной когерентной накачке возможно только при оптимальном подборе длины волны излучения.*

**Ключевые слова:** лазер, краситель, родамин 6Ж, спектральная эффективность генерации, микросекундная когерентная накачка, поглощение в канале возбужденных синглетных и триплетных уровней, нелинейная рефракция, тепловые неоднородности, отрицательная тепловая линза.

## 1. Введение

Лазеры на красителях (ЛК), генерирующие импульсы излучения микросекундной длительности, применяются в различных областях науки и техники. Это либо лазеры с ламповой накачкой, либо двухступенчатые лазеры-преобразователи с когерентной накачкой [1, 2]. К недостаткам первых относятся большая расходимость излучения, потери на фотораспад молекул красителей и триплет-триплетное поглощение. В двухступенчатых лазерах-преобразователях на красителях благодаря минимальным стоксовым потерям, а также отсутствию в спектре накачки УФ и ИК составляющих обеспечивается генерация излучения с угловой расходимостью  $\sim 1$  мрад. Кроме того, в такой системе существенно возрастает ресурс работы красителя лазера второй ступени [1, 2]. Использование задающего генератора с двухступенчатым возбуждением и построенных на основе такой схемы возбуждения усилителей позволяет получать перестраиваемые по спектру импульсы излучения с длительностью  $\sim 1$  мкс, расходимость  $\sim 10^{-3}$  рад, спектральной шириной  $\sim 10^{-3}$  нм и энергией  $\sim 0.5$  Дж [3].

Лазеры на красителях, генерирующие микросекундные импульсы излучения с указанными характеристиками, наиболее перспективны в системах художественной голографии. Это связано с требованиями, налагаемыми на длительность импульса генерации, которая, с одной стороны, должна соответствовать характеристикам фо-

томатериалов, а с другой – характерным скоростям изменения поверхностной структуры фотографируемых объектов, приводящим к снижению контраста регистрируемых голограмм. В частности для портретной голографии, как показывают оценки, требуются импульсы излучения длительностью  $\sim 1$  мкс [4].

Кроме того, эти лазеры используются в спектроскопии, нелинейной оптике, фотохимии, биологии и медицине. Например, в области интракорпоральной литотрипсии нашли широкое применение ЛК с микросекундной ламповой накачкой. Разработкой и выпуском медицинских установок на основе лазеров указанного типа занимаются ряд фирм Европы и США [5, 6]. Преимущества таких лазеров состоят в селективности воздействия, а также в том, что микросекундные импульсы излучения, в отличие от наносекундных, не приводят к разрушению световода, когда после стандартного сеанса литотрипсии в мочеточнике могут оставаться в виде частичек разрушенное кварцевое волокно и полимерная оболочка.

Проведенные ранее исследования показывают, что для некоторых красителей при когерентной наносекундной накачке наблюдается аномальная зависимость эффективности (КПД) генерации от длины волны возбуждающего излучения [7–9]. Подобные исследования были выполнены для ряда органических красителей (ПОПОП (1,4-Di[2-(5-phenyloxazolyl)]benzene), кумарин 120, перилен, нафталимиды) [7, 10]. Из этих работ следует, что накачка излучением, длина волны которого совпадает с центром полосы поглощения красителя, не является оптимальной. Одни авторы отмечают значительное влияние на наблюдаемые в экспериментах эффекты наведенных потерь в каналах возбужденных триплетных [11] и синглетных [12] уровней. Другие, наоборот, отмечают, что влияние указанных потерь на характер зависимости КПД генерации от длины волны излучения накачки невелико [13].

В.В.Тарковский, С.С.Ануфрик, В.Ю.Курстак. Гродненский государственный университет им. Янки Купалы, Беларусь, 230023 Гродно, ул. Ожешко, 22;  
e-mail: tarkovsky@grsu.by, anufrik@grsu.by

Поступила в редакцию 4 сентября 2020 г., после доработки – 5 марта 2021 г.

В настоящей работе представлены результаты исследований влияния наведенного поглощения и индуцированных накачкой в активной среде тепловых неоднородностей на КПД генерации этанольного раствора родамина 6Ж при накачке излучением ЛК микросекундной длительности [14, 15].

## 2. Экспериментальная установка и методика измерений

В экспериментах использовался лазер-преобразователь на красителях с двухступенчатым возбуждением и система измерения энергетических и спектральных характеристик генерируемого излучения, показанные на рис.1 [1, 2].

Источником накачки в лазере А первой ступени служила коаксиальная лампа конструкции Дзюбенко с внутренним диаметром 8 мм и длиной 250 мм [2, 16]. Резонатор ЛК был образован плоским диэлектрическим зеркалом ( $R = 100\%$ ) и стопой из трех плоскопараллельных пластин из стекла К8, которая в данном случае являлась оптимальным выходным зеркалом.

В разрядный контур входили 12 соединенных параллельно малоиндуктивных конденсаторов К75-48 общей емкостью 2.64 мкФ и игнитронный разрядник ИРТ-6. Напряжение питания составляло 18 кВ. Разрядный промежуток лампы заполнялся ксеноном при давлении 20–30 Тор. Длительность импульса излучения накачки по уровню 0.5 составляла 2 мкс при фронте нарастания 0.8 мкс. Электрическая энергия импульса накачки равнялась  $\sim 430$  Дж.

Резонатор второй ступени лазера-преобразователя был образован плоским, «глухим» для излучения с  $\lambda = 510\text{--}610$  нм, и плоским выходным с  $R = 60\%$  для  $\lambda = 490\text{--}565$  нм зеркалами. Накачка лазера второй ступени осуществлялась квазипродольно.

Активными средами в лазере А служили этанольные растворы красителей кумарина 30 ( $\lambda_g = 505$  нм), кумарина 7 ( $\lambda_g = 525$  нм) и кумарина 6 ( $\lambda_g = 540$  нм) при концентрации  $1.2 \times 10^{-4}$  моль/л. Излучение с указанными длинами волн использовалось, во-первых, для накачки лазера на родамине 6Ж второй ступени и, во-вторых, служило для накачки раствора родамина 6Ж в кювете 14 (рис.1), в

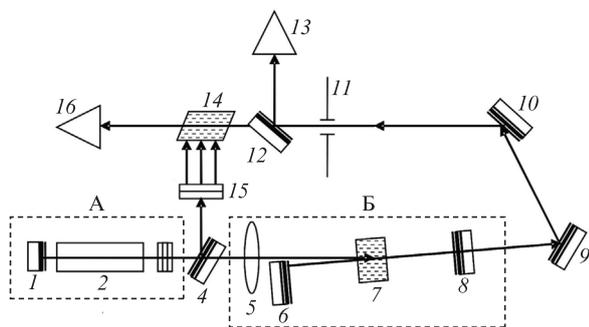


Рис.1. Схема экспериментальной установки:

А – лазер на красителях с ламповой накачкой первой ступени на основе коаксиальной лампы-кюветы; Б – лазер на красителях второй ступени; 1, 6 – «глухие» зеркала; 2 – коаксиальная лампа-кювета; 3 – выходное зеркало лазера на красителях с ламповой накачкой (стопа из трех плоскопараллельных пластин); 4, 9, 10, 12 – поворотные зеркала; 5 – фокусирующая линза; 7 – активная среда (этанольный раствор родамина 6Ж); 8 – выходное зеркало лазера на красителях второй ступени; 11 – диафрагма; 13, 16 – измерители ИМО-2Н; 14 – кювета с исследуемым этанольным раствором родамина 6Ж; 15 – цилиндрическая линза.

области как минимального КПД генерации (провал), так и максимального КПД указанной активной среды.

Излучение лазера Б служило для зондирования этанольного раствора родамина 6Ж в кювете 14 в области усиления. Зондирование осуществлялось в отсутствие и при наличии накачки на указанных длинах волн. Как предполагается в работах [14, 15], именно в области усиления родамина 6Ж в результате поглощения излучения накачки в системе возбужденных синглетных уровней могут образовываться обратимые фотопродукты, которые снижают эффективность генерации. Для согласования апертур зондирующего пучка и кюветы с образцом 14 использовалась диафрагма 11 из фторопласта диаметром 7 мм. Концентрация родамина 6Ж в кюветах 7 и 14 выбиралась такой, чтобы обеспечить на длине волны излучения накачки коэффициент поглощения  $15\text{--}25$  см $^{-1}$ . Такое поглощение в типичных красителях соответствует концентрации  $5 \times 10^{16}$  см $^{-3}$  ( $10^{-4}$  моль/л) [17]. Перед началом экспериментов для точного измерения энергии падающего на образец зондирующего излучения проводилась взаимная калибровка измерителей 13, 16.

## 3. Результаты экспериментов и их обсуждение

### 3.1. Влияние на КПД генерации потерь лазерного излучения в канале возбужденных синглетных уровней

Авторами работ [14, 15] было показано, что при изменении длины волны излучения накачки в пределах основной полосы поглощения красителей различных классов имеет место аномальная зависимость КПД генерации, а также ее спектральных характеристик от длины волны накачки, которая выражается в том, что по мере увеличения длины волны излучения накачки КПД сначала возрастает, затем вблизи максимума полосы поглощения красителя падает и снова растет на длинноволновом склоне полосы. Для родамина 6Ж соответствующая зависимость представлена на рис.2 (кривая 1). На этом же ри-

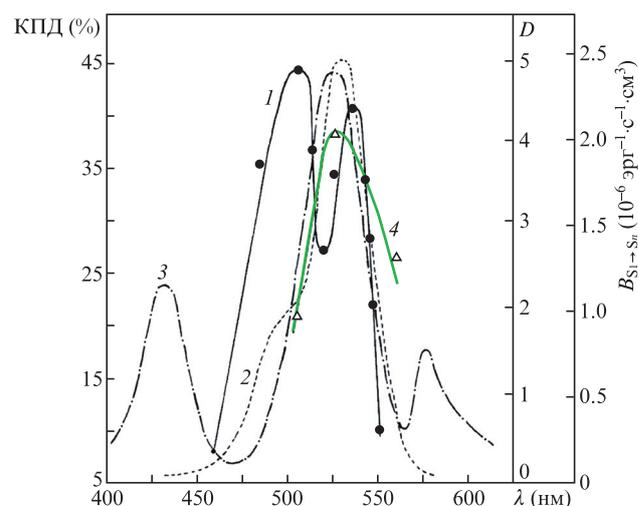


Рис.2. Зависимость КПД генерации этанольного раствора родамина 6Ж от длины волны излучения накачки (1), спектр основной полосы поглощения родамина 6Ж (2), спектр коэффициента Эйнштейна  $B_{S1-Sn}$  для поглощения в канале возбужденных синглетных уровней для раствора родамина 6Ж (3) и спектр оптической плотности этанольного раствора родамина 6Ж, измеренный в области усиления при воздействии мощного излучения накачки (4).

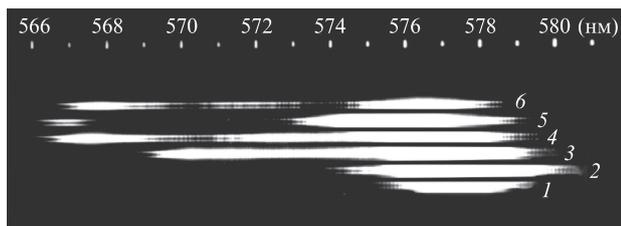


Рис.3. Спектры генерации этанольного раствора родамина 6Ж при накачке излучениями с длинами волн 460 (1), 485 (2), 505 (3), 520 (4), 525 (5) и 535 нм (6).

сунке представлены спектр оптической плотности этанольного раствора родамина 6Ж (кривая 2) и аналогичный спектр (кривая 4), измеренный при воздействии мощного излучения накачки, а также спектр коэффициента Эйнштейна  $B_{S_1 \rightarrow S_0}$  для поглощения в канале возбужденных синглетных уровней, полученный из экспериментальных данных работ [18, 19].

При увеличении длины волны излучения накачки (рис.3) происходит расширение полосы генерации в коротковолновую область на 10–12 нм, а в области провала наблюдается двухполосная генерация. Смещение спектров генерации в коротковолновую область свидетельствует о возрастании спектрально зависимых потерь лазерного излучения [17]. Кроме того установлено, что подобные эффекты имеют место и в твердотельных системах, в частности в двухступенчатом лазере-преобразователе на красителях в твердотельных матрицах на основе композита нанопористое стекло–полимер [20].

С целью выяснения возможного влияния на КПД генерации потерь лазерного излучения в каналах возбужденных триплетных уровней были проведены исследования зависимости временного хода импульсов накачки и генерации от спектрального состава возбуждающего излучения (рис.4). Установлено, что во всех рассматриваемых случаях дополнительные зависящие от времени потери за время генерации не появляются, т.е. потери, связанные с поглощением лазерного излучения молекулами в канале возбужденных триплетных уровней, играют второстепенную роль по сравнению с потерями в канале возбужденных синглетных уровней. Как известно из литературы, максимальный КПД генерации в этанольном растворе родамина 6Ж при накачке наносекундными импульсами излучения с  $\lambda_p = 530$  нм достигается при плотности мощности излучения 20–40 МВт/см<sup>2</sup>, и в оптимальных условиях КПД определяется потерями излучения накачки и генерации в канале возбужденных синглетных уровней [21].

Сравнение экспериментальных данных, полученных при накачке микросекундными импульсами, с результатами для наносекундной накачки показывает, что при оптимальных плотностях энергии накачки импульсами длительностью  $\sim 1$  мкс реализуются практически такие же КПД ( $\sim 40\%$ ), как и при наносекундной накачке с соответствующими плотностями энергии.

Для выяснения влияния на эффективность генерации потерь лазерного излучения в канале возбужденных синглетных уровней проводилось зондирование этанольного раствора родамина 6Ж в области усиления красителя ( $\lambda = 570$  нм) после накачки раствора в спектральных областях 505 нм (первый максимум КПД генерации), 525 нм (минимальный КПД генерации) и 540 нм (второй максимум КПД генерации). Оптическая плотность исследуемо-

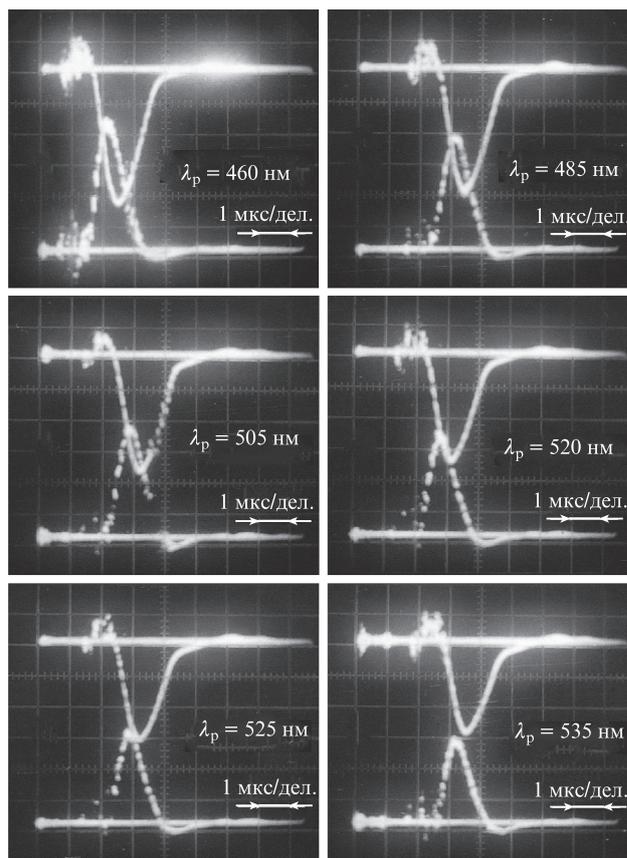


Рис.4. Импульсы накачки (вверху) и генерации (внизу) этанольного раствора родамина 6Ж при изменении спектрального состава излучения накачки.

го раствора измерялась в соответствии с методикой, описанной выше.

Проведенные эксперименты дали следующие результаты. В отсутствие накачки зондирующее излучение на  $\lambda = 570$  нм испытывает поглощение ( $D \approx 0.4$ ). При накачке в области первого максимума КПД ( $\lambda_p = 505$  нм) зондирующий сигнал на выходе из кюветы усиливается на 15%–19%, что обусловлено инверсной населенностью рабочих уровней, создаваемой в образце излучением накачки.

После воздействия излучения накачки в области минимума КПД ( $\lambda_p = 525$  нм) усиления зондирующего сигнала не наблюдается. Наоборот, 10%–12% зондирующего сигнала поглощается.

После воздействия излучения накачки в области второго максимума КПД ( $\lambda_p = 540$  нм) зондирующий сигнал незначительно усиливается (на  $\sim 2\%$ ). Малая величина усиления в данном случае обусловлена, скорее всего, потерями из-за перекрытия длинноволновой части контура поглощения с коротковолновой частью спектра флуоресценции.

Таким образом, данные экспериментов подтверждают сделанные в работах [14, 15] выводы о том, что при микросекундной когерентной накачке растворов красителей в результате поглощения излучения накачки образуются долгоживущие фотопродукты ( $\tau > 25$  нс), сильно поглощающие в спектральной области усиления [21–23]. Для объяснения влияния потерь на КПД генерации родамина 6Ж следует обратить внимание на вид спектра коэффициента Эйнштейна  $B_{S_1 \rightarrow S_0}$  для поглощения в канале возбужденных синглетных уровней (см. рис.2) – макси-

мум спектра точно совпадает с минимумом КПД генерации родамина 6Ж.

**3.2. Влияние на КПД генерации тепловых неоднородностей, индуцированных накачкой в активной среде**

Как уже отмечалось, для интерпретации экспериментальных данных может использоваться ряд эффектов, имеющих место в активной среде ЛК: T–T-поглощение, потери в канале синглетных уровней, индуцируемая излучением накачки тепловая неоднородность, взаимодействие генерируемого излучения с продуктами фотодеструкции красителя, индуцированной накачкой [24, 25].

Определение коэффициента потерь лазерного излучения, важного для расчета эффективности лазера на красителях с когерентной накачкой, непосредственно связано с расходимостью излучения. Расходимость генерируемого излучения увеличивается из-за тепловой дефокусировки, индуцируемой накачкой. (Типичные потери энергии накачки в процессе работы лазера на красителях составляют ~50%, и вся эта энергия в конечном счете идет на нагрев активной среды, изменяя ее показатель преломления.)

Проведенный в [26] анализ кинетики генерации ЛК с микросекундной накачкой на основе метода скоростных уравнений выявил чрезвычайно слабое влияние на изучаемый эффект T–T-поглощения. В то же время предполагалось, что достаточно большое значение имеет релаксация энергии электронного возбуждения в высших возбужденных синглетных состояниях. Значительный вклад в данный эффект может давать наведенное S–S-поглощение, спектральный максимум которого соответствует максимуму обычного поглощения [18].

Схема энергетических уровней, позволяющая описать процессы в ЛК с учетом наведенного поглощения в каналах S–S- и T–T-уровней энергии, приведена на рис.5. При расчете зависимости КПД генерации от длины волны микросекундной монохроматической накачки были учтены спектральные зависимости сечения поглощения в каналах S<sub>0</sub>–S<sub>1</sub>-уровней – σ<sub>0S</sub>(λ) и сечения поглощения в

каналах S<sub>1</sub>–S<sub>2</sub>-уровней – σ<sub>SS</sub>(λ). Влияние спектрального изменения T–T-поглощения и связанных с ним потерь учитывает сечение поглощения σ<sub>TT</sub>(λ).

Система уравнений (1), описывающих генерацию ЛК с учетом указанных процессов, имеет следующий вид:

$$\begin{aligned} \frac{dn_1}{dt} &= \frac{\sigma_e(\lambda_g)c}{n_d}(n_3 - n_1)q + \frac{n_3}{\tau_{31}} + d_{31}n_3 - n_1d_{10}, \\ \frac{dn_2}{dt} &= P_{32}n_3 + d_{42}n_4 - \frac{\sigma_{TT}(\lambda_g)c}{n_d}(n_2 - n_4)q - P_{20}n_2, \\ \frac{dn_3}{dt} &= I_p(t)\sigma_{0S}(\lambda_p)(N - n_1 - n_2 - 2n_3 - n_4 - n_5 - n_6) \\ &\quad + d_{53}n_5 - \frac{n_3}{\tau_{31}} - d_{31}n_3 - \frac{\sigma_e(\lambda_g)c}{n_d}(n_3 - n_1)q \\ &\quad - P_{32}n_3 - I_p(t)\sigma_{SS}(\lambda_p)(n_3 - n_5) - \frac{\sigma_{SS}(\lambda_g)c}{n_d}(n_3 - n_5)q, \\ \frac{dn_4}{dt} &= \frac{\sigma_{TT}(\lambda_g)c}{n_d}(n_2 - n_4)q - d_{42}n_4, \\ \frac{dn_5}{dt} &= I_p(t)\sigma_{SS}(\lambda_p)(n_2 - n_5) \\ &\quad + \frac{\sigma_{SS}(\lambda_g)c}{n_d}(n_3 - n_5)q - d_{53}n_5 - P_{56}n_5, \\ \frac{dn_6}{dt} &= P_{56}n_5 - \frac{\sigma_a(\lambda_g)c}{n_d}n_6q, \\ \frac{dq}{dt} &= \frac{\sigma_a(\lambda_g)c}{n_d}(n_3 - n_1)q - \frac{\sigma_{SS}(\lambda_g)c}{n_d}(n_3 - n_5)q \\ &\quad - \frac{\sigma_{TT}(\lambda_g)c}{n_d}(n_2 - n_4)q - \frac{q}{\tau_c} + \Omega \frac{n_3}{\tau_{31}} - \frac{\sigma_a(\lambda_g)c}{n_d}n_6q, \end{aligned} \tag{1}$$

где

$$\tau_c = \frac{-2l}{c \ln[R_1 R_2 (1 - T_\Sigma)^2]}$$

– время жизни фотона в резонаторе; *l* – база резонатора; *R*<sub>1</sub> и *R*<sub>2</sub> – коэффициенты отражения зеркал; Ω = π*b*<sup>2</sup> × (16*Kl*<sup>2</sup>)<sup>-1</sup> – коэффициент, характеризующий относительную часть спонтанного излучения, распространяющегося в канале генерации; *b* – поперечный размер пучка накачки; *K* – коэффициент, учитывающий долю спонтанного излучения в генерируемом лазером излучении; *N* – концентрация молекул красителя; *n<sub>i</sub>* – концентрация частиц в соответствующих возбужденных состояниях; *q* – объемная плотность генерируемых фотонов излучения с длиной волны λ<sub>g</sub>; σ<sub>e</sub>(λ<sub>g</sub>) – сечение вынужденного излучения; σ<sub>a</sub>(λ<sub>g</sub>) – сечение поглощения в высшем возбужденном синглетном состоянии; *d<sub>ij</sub>* – коэффициенты, отвечающие за безызлучательную релаксацию состояния *i* на переходе *i* – *j*, а *P<sub>ij</sub>* – за интеркомбинационную конверсию состояния *i* на этом переходе; τ<sub>31</sub> – радиационное время жизни верхнего лазерного уровня; *n<sub>d</sub>* – показатель преломления раствора красителя; *I<sub>p</sub>* – интенсивность излучения накачки; T<sub>Σ</sub> – суммарные потери за один обход резонатора.

Диаметр пятна лазерного излучения *d* на выходном зеркале пропорционален расходимости излучения θ, а площадь пятна *S* – квадрату расходимости. Поскольку

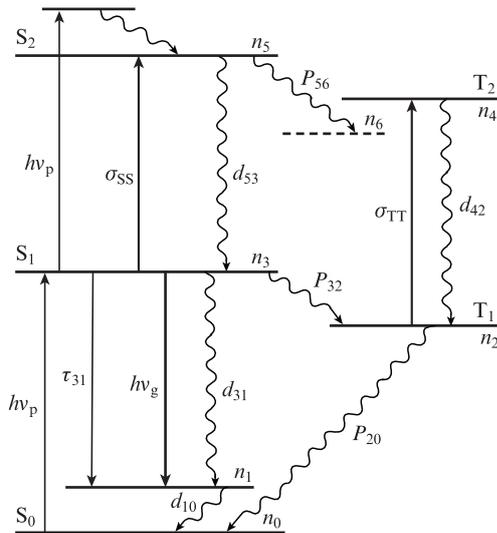


Рис.5. Схема энергетических уровней красителя, использованная в расчетах; S<sub>0</sub>, S<sub>1</sub>, S<sub>2</sub> – синглетные уровни энергии, T<sub>1</sub>, T<sub>2</sub> – триплетные уровни энергии, *d<sub>ij</sub>* – вероятности безызлучательных переходов, *P<sub>ij</sub>* – вероятности интеркомбинационной конверсии.

коэффициент потерь излучения  $T_{\text{los}}$  пропорционален  $S$ , можно записать:

$$T_{\text{los}} \approx \frac{S}{S_{\text{min}}} = \left( \frac{\theta}{\theta_{\text{min}}} \right)^2. \quad (2)$$

Принимая минимальную расходимость излучения равной дифракционной, для минимальной площади пятна на выходе лазера получим:

$$S_{\text{min}} = \frac{\pi(l \tan \theta_{\text{min}})^2}{4}. \quad (3)$$

Расходимость излучения за один проход резонатора на выходе активной среды лазера определим как расходимость гауссова пучка, испытавшего тепловую дефокусировку в соответствии с уравнением [27]

$$\frac{d^2 f(x)}{dx^2} = -\frac{e^{\beta x}}{R_{\text{nl}}^2 f(x)} + \frac{1}{R_{\text{dif}}^2 f^3(x)}, \quad (4)$$

где

$$R_{\text{nl}} = a \sqrt{\frac{\pi \kappa}{\delta P |d\varepsilon/dT|}}$$

– длина, связанная с нелинейной рефракцией лазерного пучка;  $f$  – нормированная ширина гауссова пучка;  $\beta$  – коэффициент усиления;  $R_{\text{dif}} = ka^2/2$  – характерная длина, связанная с дифракцией пучка;  $k$  – волновое число;  $a$  – радиус пучка лазерного излучения;  $\kappa$  – коэффициент теплопроводности активной среды;  $\varepsilon$  – диэлектрическая проницаемость;  $T$  – абсолютная температура;  $x$  – направление вдоль оси лазерного пучка.

Численные исследования показали, что коэффициент усиления  $\beta$  при квазистационарном режиме генерации остается постоянным, а следовательно, величина  $\beta$  в уравнении (4) не меняется.

Как показали расчеты по формуле (4), расходимость излучения при фиксированных параметрах активной среды линейно увеличивалась с ростом мощности накачки:

$$\theta = \theta_0 + \alpha \Delta P, \quad (5)$$

где  $\Delta P = P - P_{\text{th}}$ ;  $P$  – мощность излучения накачки;  $P_{\text{th}}$  – пороговая мощность накачки. В выражении (5) минимальная расходимость для нашего случая составляла 0.94 мрад, а коэффициент  $\alpha = \Delta\theta/\Delta P$  был равен 0.82 мрад/Вт. Исходя из полученных результатов можно найти коэффициент потерь, воспользовавшись выражением (2):

$$T_{\text{los}} = \frac{1}{\theta_0^2} [\theta_0 + \alpha(\gamma - 1)P_{\text{th}}]^2, \quad (6)$$

где  $\gamma = P/P_{\text{th}}$ .

Для определения основного механизма, определяющего сущность зависимости КПД генерации от длины волны излучения накачки, необходим детальный теоретический анализ с привлечением компьютерного моделирования на основе разработанной модели.

При моделировании ЛК, возбуждаемого излучением микросекундной длительности, использовались параметры лазерного красителя родамин 6Ж, часто применяемого в экспериментальных исследованиях:  $\sigma_e = 2.16 \times 10^{-16} \text{ см}^2$ ,  $\tau_{31} = 5.9 \text{ нс}$ ,  $\lambda_g = 5.6 \times 10^{-5} \text{ см}$ ,  $n_d = 1.36$ ,  $N = 1.2 \times$

$10^{17} \text{ см}^{-3}$ ,  $\sigma_{0S} = 4 \times 10^{-16} \text{ см}^2$  (в максимуме  $S_0 \rightarrow S_1$ -полосы поглощения),  $\sigma_{TT} = 5 \times 10^{-17} \text{ см}^2$  (в максимуме Т–Т-полосы поглощения),  $\sigma_{SS} = 1.75 \times 10^{-16} \text{ см}^2$  (в максимуме  $S_1 \rightarrow S_2$ -полосы поглощения),  $l = 20 \text{ см}$ ,  $P_{32} = 4.2 \times 10^5 \text{ с}^{-1}$ ,  $d_{10} = 5 \times 10^{10} \text{ с}^{-1}$ ,  $d_{31} = 10^7 \text{ с}^{-1}$ ,  $d_{53} = 2 \times 10^{10} \text{ с}^{-1}$ ,  $d_{42} = 5 \times 10^6 \text{ с}^{-1}$ ,  $P_{20} = 2 \times 10^5 \text{ с}^{-1}$ ,  $b = 0.5 \text{ см}$ ,  $K = 10$ ,  $R_1 = 1$ ,  $R_2 = 0.6$ .

Спектральные зависимости сечений поглощения, наведенного поглощения и вынужденного излучения, использованные в расчетах, были получены с помощью интерполяции имеющихся данных [24, 25, 28–31].

Теоретическое исследование кинетики генерации в зависимости от уровня накачки  $\gamma$  показало, что максимумы импульсов накачки и генерации совпадают, а увеличение  $\gamma$  приводит к возрастанию мощности и длительности импульсов излучения (рис.6). Как видно из рис.6, с ростом уровня возбуждения генерируемый импульс удлиняется симметрично относительно своего максимума, что хорошо согласуется с данными экспериментальных исследований. При  $\gamma = 8$  импульс генерации задержан относительно начала импульса накачки на  $\sim 0.5 \text{ мкс}$ , а время выхода на квазистационарный режим генерации составляет примерно 0.1 мкс (рис.6,з).

При исследовании зависимости КПД генерации ЛК от длины волны излучения микросекундной накачки следует учесть, что изменение поглощения накачки при перестройке ее длины волны приведет к соответствующему изменению пороговой плотности мощности накачки. Поскольку данная величина изменяется, целесообразно выяснить влияние  $\gamma$  на КПД генерации при фиксированной длине волны излучения накачки. Указанная зависимость приведена на рис.7,а. Тот факт, что она имеет максимум при  $\gamma = 5$ , а затем плавно спадает, свидетельствует о наличии потерь, значительно увеличивающихся с ростом плотности мощности накачки. Речь идет о той части энергии накачки, которая в процессе работы лазера конвертируется в тепло и приводит к возникновению термооптических искажений резонатора, представляющих собой отрицательную линзу, оптическая сила которой увеличивается с ростом плотности мощности накачки [32].

Тепловые потери энергии в активной среде пропорциональны разности энергий накачки и генерируемого излучения, а их влияние начнет проявляться тогда, когда энергия накачки превысит некоторое значение  $E_{\text{min}}$ , определенное для данных условий работы лазера. В этом случае воздействие отрицательной тепловой линзы, индуцированной излучением накачки, существенно увеличивает расходимость генерируемого излучения. Дальнейшее увеличение дефокусирующего действия тепловой линзы ведет в конечном счете к снижению КПД с ростом энергии накачки (рис.7,а).

Экспериментально зарегистрированная зависимость КПД генерации от плотности энергии излучения накачки микросекундной длительности приведена на рис.7,б. Максимальный КПД достигался при плотности энергии 2 Дж/см<sup>2</sup>, тогда как пороговая плотность энергии накачки составляла 0.5 Дж/см<sup>2</sup>, что соответствует  $\gamma = 4$  и хорошо согласуется с расчетным значением  $\gamma = 5$ .

Зависимости КПД генерации от длины волны излучения накачки, рассчитанные при различных значениях нормированной накачки, приведены на рис.8, а экспериментально зарегистрированная зависимость представлена на рис.2 кривой 1.

При  $\gamma \leq 5$  (рис.8,а) зависимость КПД генерации от длины волны излучения накачки имеет один максимум.

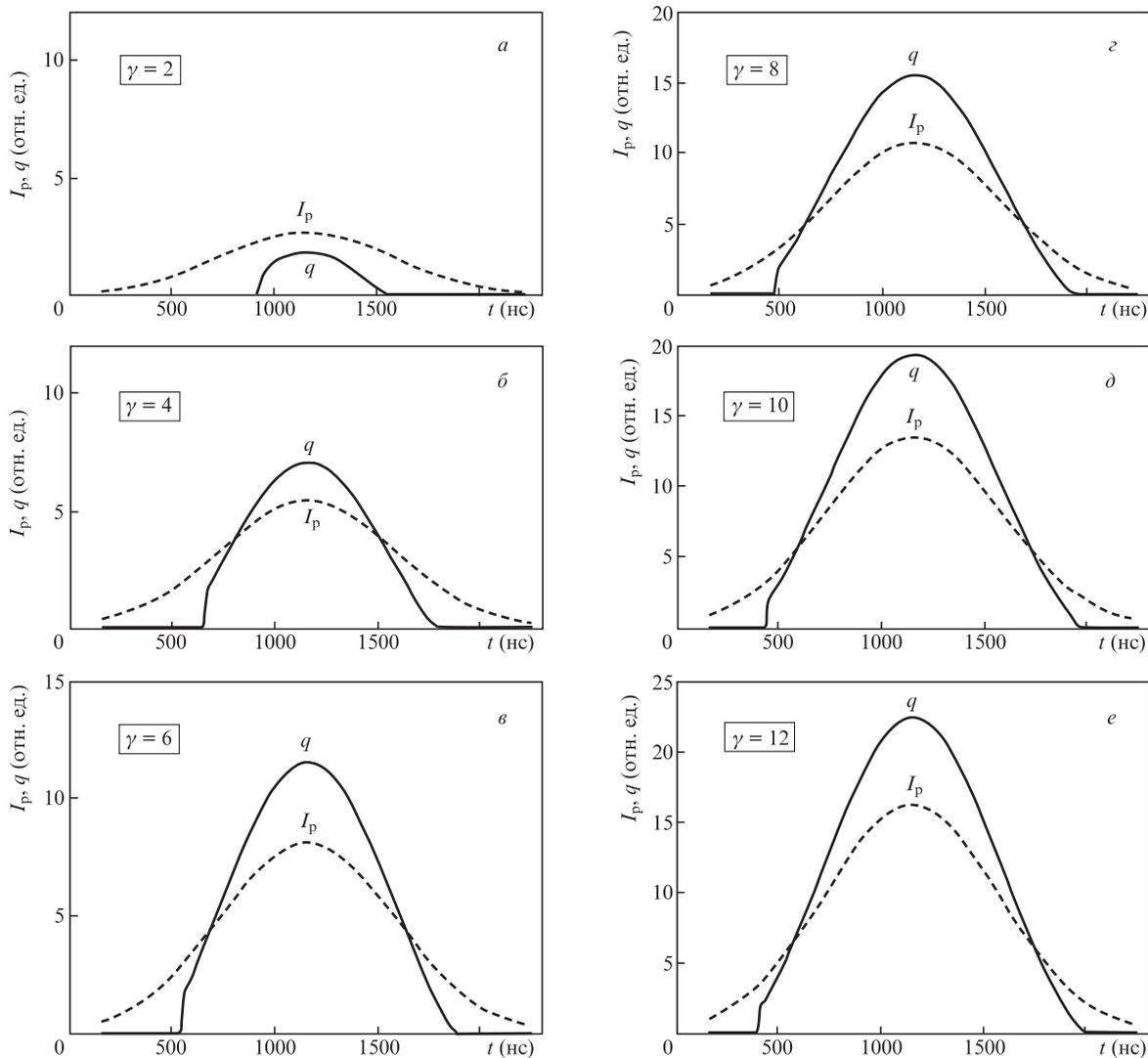


Рис.6. Кинетика генерации лазера на красителях при микросекундной длительности импульсов излучения накачки и различных превышениях порога  $\gamma$  ( $q$  – объемная плотность фотонов генерации).

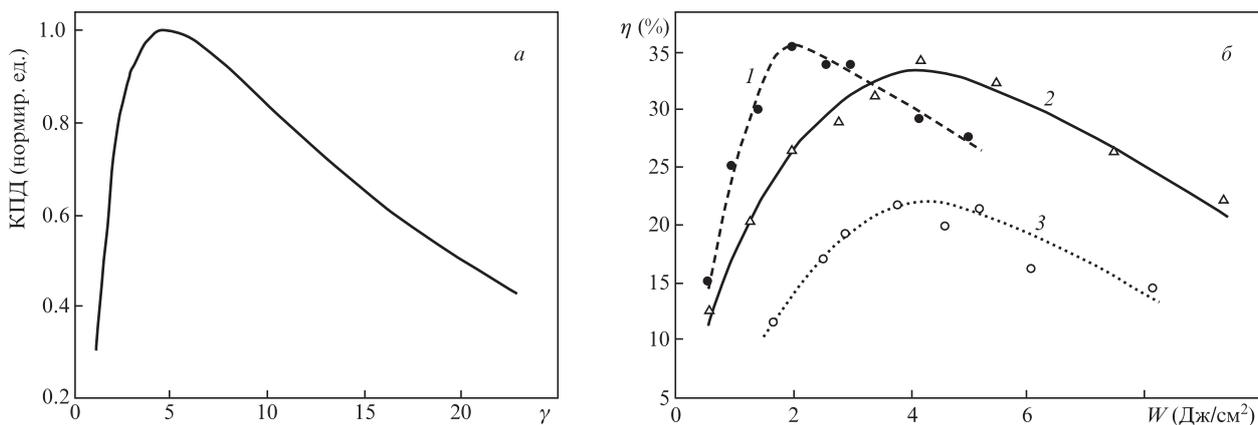


Рис.7. Расчетная зависимость КПД генерации, нормированная на его максимальное значение, от мощности излучения накачки, нормированной на пороговую (а), и экспериментальная зависимость КПД генерации от плотности энергии накачки  $W$  при длительности импульсов накачки 1 (1), 2 (2), 5 мкс (3) и длине волны излучения накачки  $\lambda_p = 532$  нм (б).

Большим значениям накачки соответствует и больший КПД. В данном случае коэффициент потерь из-за влияния тепловой линзы невелик. При  $\gamma > 8$  характер зависимости КПД генерации от длины волны излучения накачки изменяется. Как видно из рис.8,б, увеличение мощно-

сти накачки приводит к уменьшению КПД (кривые 2–6). В этом случае вблизи максимума поглощения образуется провал, увеличивающийся с ростом мощности накачки (кривые 3–6). В данном случае коэффициент потерь, вызванных действием тепловой линзы, достаточно высок.

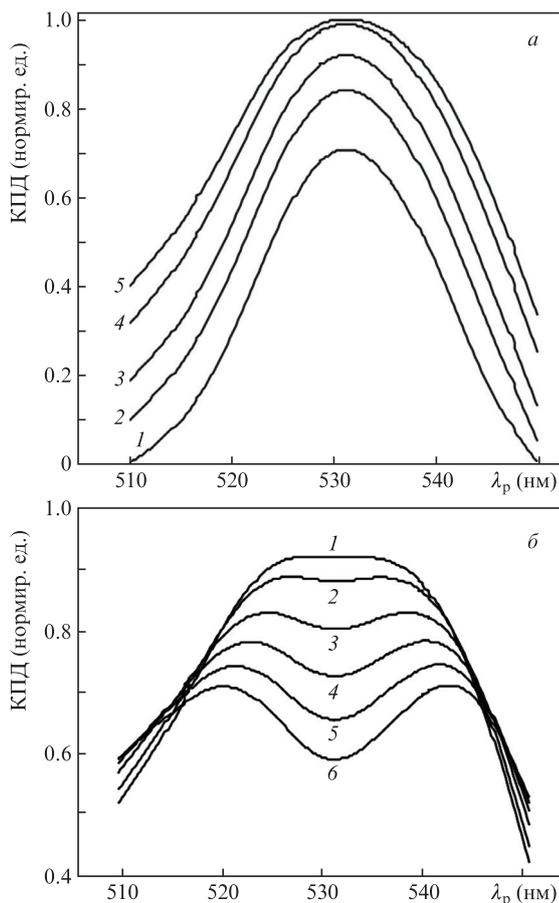


Рис.8. Расчетные зависимости КПД генерации, нормированные на его максимальные значения, от длины волны излучения накачки при  $\gamma = 2$  (1), 2.5 (2), 3 (3), 4 (4), 5 (5) (а) и  $\gamma = 8$  (1), 9 (2), 11 (3), 13 (4), 15 (5), 17 (6) (б).

Наибольшего значения он достигает в максимуме поглощения красителя, поскольку на данной длине волны наибольшая доля поглощенной энергии расходуется на термооптические искажения активной среды. Данные расчета хорошо подтверждаются экспериментальными результатами, представленными на рис.2 (кривая 1), где отчетливо виден провал КПД генерации лазера на родамине 6Ж при накачке на  $\lambda_p = 530$  нм.

Экспериментальным подтверждением наличия термооптических искажений и формирования отрицательной линзы в этанольном растворе родамина 6Ж при микросекундной накачке может служить рис.9,а, на котором приведена фотография пространственного распределения интенсивности излучения в дальней зоне при накачке на  $\lambda_p = 525$  нм в области минимума энергии генерации ( $\gamma = 8$ ). Отчетливо видна интерференционная картина в виде концентрических колец, обусловленных наличием термической линзы в растворе. Наблюдаемой картине соответствует угловая расходимость  $\theta \approx 10^{-3}$  рад. Для сравнения на рис.9,б приведено пространственное распределение интенсивности лазерного излучения при наносекундной накачке ( $\lambda_p = 532$  нм). Сравнение показывает значительные различия в структурах и размерах пятен и, соответственно, меньшую угловую расходимость при наносекундном возбуждении.

Следует отметить, что индуцируемая излучением накачки тепловая линза не является единственной причиной снижения КПД генерации в зависимости от длины

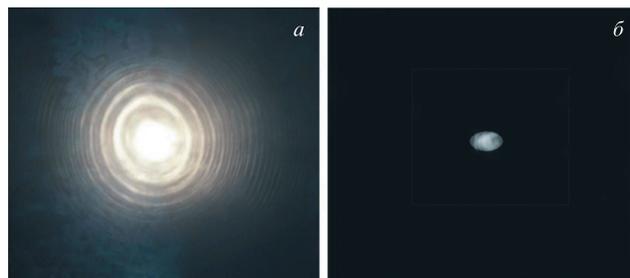


Рис.9. Фотографии пространственных распределений интенсивности лазерного излучения этанольного раствора родамина 6Ж в дальней зоне при микросекундной накачке на  $\lambda_p = 525$  нм (а) и наносекундной накачке на  $\lambda_p = 532$  нм (б).

волны накачки различных красителей, поскольку регистрируемые экспериментально провалы наблюдаются не в центрах их полос поглощения. Провалы в спектральной зависимости КПД генерации находятся как в центрах полос поглощения, так и на их коротковолновых или длинноволновых крыльях [14, 15, 23]. Для объяснения этого следует учесть, что спектральные контуры поглощения и флуоресценции красителя являются неоднородно уширенными. При воздействии мощной монохроматической накачки контуры поглощения и усиления будут испытывать определенную трансформацию, вызванную соответствующим изменением населенностей энергетических состояний. Поэтому можно сделать вывод, что положение провалов определяется суммарным влиянием в основном двух рассмотренных в настоящей работе эффектов: нелинейной рефракции и релаксационных процессов в системе синглетных уровней.

Численные исследования влияния наведенного поглощения и соответствующих потерь в канале высших синглетных уровней показали, что данные потери невелики из-за малости населенности соответствующих энергетических состояний. Относительная населенность состояния  $S_2$  составляет  $\sim 10^{-6}$ , а его время жизни – несколько пикосекунд.

#### 4. Выводы

Установлено, что наличие провала в зависимости КПД генерации от длины волны накачки лазера на родамине 6Ж вызвано нелинейной рефракцией в активной среде, формирующей термооптические искажения, которые приводят к образованию отрицательной линзы и дефокусировке генерируемого излучения. При этом наведенное поглощение в каналах  $S_1-S_2$ - и T-T-уровней молекул красителя не оказывает заметного влияния на изменение КПД генерации.

Индукцируемые излучением накачки тепловые потери при накачке в максимум полосы поглощения родамина 6Ж проявляются в большей степени при значительном превышении пороговой плотности излучения накачки ( $\gamma \geq 5$ ).

Показано, что для получения высокой эффективности генерации лазера на родамине 6Ж необходимо использовать излучение накачки с длиной волны  $\lambda_p = 500$  нм. В этом случае достигается максимальный КПД генерации (не менее 45%). Накачка в области максимума поглощения красителя (525–530 нм) не является оптимальной, поскольку в этом спектральном диапазоне наблюдается уменьшение КПД генерации.

Учет влияния рассмотренных процессов позволит обеспечить оптимальный подбор спектрального диапазона излучения для накачки светодиодами различных красителей, а также повысить эффективность и стабильность генерационных характеристик лазерных систем на красителях микросекундного и наносекундного диапазонов длительностей.

1. Артемьев Н.М., Батище С.А., Борткевич А.В., Тарковский В.В. и др. *ЖПС*, **47**, 719 (1987).
2. Батище С.А., Мостовников В.А., Тарковский В.В. *Квантовая электроника*, **22**, 651 (1995) [*Quantum Electron.*, **25**, 623 (1995)].
3. Батище С.А., Мостовников В.А., Тарковский В.В. *ПТЭ*, № 4, 130 (1995).
4. Стаселько Д.И., Стригун В.Л. *Оптика и спектроскопия*, **39**, 170 (1975).
5. Fleming G., Brinkman R., Strunge C., Endelhardt R. *Proc. SPIE*, **1421**, 146 (1991).
6. Кочиев Д.Г., Малютин А.А. *Волоконно-оптические технологии, материалы и устройства*, № 4, 95 (2001).
7. Грузинский, В.В., Кухто А.В., Хон Бен И. *ЖПС*, **58**, 162 (1993).
8. Абакумов Г.А., Абакумов Г.А., Воробьев С.А., Подольская Л.С., Поляков Б.И., Симонов А.П., Фадеев В.В. *Optica Acta*, **23**, 71 (1977).
9. Тихонов Е.А., Шпак М.Т. *Нелинейные оптические явления в органических соединениях* (Киев: Наукова думка, 1979).
10. Kukhto A.V., Galkin V.V., Shakkah G.H. *Proc. SPIE*, **3573**, 46 (1998).
11. Richard A. Keller. *IEEE J. Quantum Electron.*, **6**, 411 (1970).
12. Ицхоки И.Я., Серегин С.Л., Чередниченко О.Б. *ЖПС*, **39**, 390 (1983).
13. Flamant P. *Opt. Commun.*, **25**, 247 (1978).
14. Тарковский В.В., Курстак В.Ю., Ануфрик С.С. *ЖПС*, **69**, 747 (2002).
15. Тарковский В.В., Курстак В.Ю., Ануфрик С.С. *Квантовая электроника*, **33**, 869 (2003) [*Quantum Electron.*, **33**, 869 (2003)].
16. Ануфрик С.С., Тарковский В.В. *Труды III конф. по лазерной физике и спектроскопии* (Минск, ИФ АНБ, 1997, с. 196).
17. Рубинов А.Н., Томин В.И. *Итоги науки и техники. Сер. Радиотехника* (М.: ВИНТИ, 1976, с. 9).
18. Батище С.А., Ганжа В.А., Мостовников В.А., Перлов Д.И., Шифрин В.П. *Тезисы III Всесоюз. конф. «Лазеры на основе сложных органических соединений и их применение»* (Минск., ИФ АН БССР, 1980, с. 233).
19. Нурмухамедов Р.Н., Плотников В.Г., Шигорин Д.Н. *Журнал физической химии*, **40**, 1154 (1966).
20. Ануфрик С.С., Колдунов М.Ф., Маненков А.А., Тарковский В.В. *ЖПС*, **75**, 708 (2008).
21. Батище С.А., Ганжа В.А., Мостовников В.А., Малевич Н.А., Перлов Д.И., Шифрин В.П. *ЖПС*, **39**, 934 (1983).
22. Батище С.А., Гурленя В.И. Малевич Н.А., Мостовников В.А., Мышалов П.И., Татур Г.А. *ЖПС*, **44**, 214 (1986).
23. Muller A., Shulz-Hening J., Tashiro H. *Appl. Phys.*, **12**, 333 (1977).
24. Копылов С.М., Лысой Б.Г., Серегин С.Л., Чередниченко О.Б. *Перестраиваемые лазеры на красителях и их применение* (М.: Радио и связь, 1991).
25. Земский В.И., Колесников Ю.Л., Мешковский И.К. *Физика и техника импульсных лазеров на красителях* (СПб.: СПб ГУИТМО, 2005).
26. Тарковский В.В., Курстак В.Ю., Ануфрик С.С., Сазонко Г.Г. *Сборник тезисов IX Междунар. конф. «Лазерная физика и оптические технологии»* (Гродно, ГрГУ им. Я.Купалы, 2012, с. 284).
27. Ахманов С.А., Сухоруков А.П., Хохлов Р.В. *УФН*, **93**, 19 (1973).
28. *Каталог активных лазерных сред на основе растворов органических красителей и родственных соединений*. Под ред. Б.И.Степанова (Минск: Ин-т физики АН БССР, 1977).
29. *Справочник по лазерам*. Под ред. А.М.Прохорова (М.: Сов. радио, 1978, т. 1).
30. Бабичев А.П. Бабушкина Н.А., Братковский А.М. и др. *Физические величины. Справочник*. Под ред. И.С.Григорьева, Е.З.Мейлихова (М: Энергоатомиздат, 1991).
31. Балашин Ю.А., Крылов К.И., Шарлай С.Ф. *Применение ЭВМ при разработке лазеров* (Л.: Машиностроение, 1989).
32. Шен И.Р. *Принципы нелинейной оптики*. Пер. с англ. под ред. С.А.Ахманова (М.: Наука, 1989).