

Евгений БЕРИК, Владимир ДАВЫДЕНКО

ВЛИЯНИЕ ТЕПЛОВЫХ ЭФФЕКТОВ НА ДИНАМИЧЕСКУЮ СТАБИЛЬНОСТЬ ДЛИНЫ ВОЛНЫ ГЕНЕРАЦИИ ЛАЗЕРОВ НА КРАСИТЕЛЯХ С ЭКСИМЕРНОЙ НАКАЧКОЙ

(Представил П. Саари)

Введение

Перестраиваемые во всем оптическом диапазоне лазерные системы с ультрафиолетовым возбуждением на базе лазеров на красителях с эксимерной накачкой получили широкое применение в спектроскопии. Существенным преимуществом этих систем перед традиционной спектроскопической техникой является высокая спектральная яркость, узкая линия генерации ~ 2 пм, большая выходная мощность излучения ~ 1 МВт. Расширение сферы применения таких комплексов связано с дальнейшим совершенствованием выходных характеристик перестраиваемого излучения. Так, в нелинейной спектроскопии и нелинейной оптике большое внимание уделяется стабильности параметров используемого излучения. Для лазеров на красителях, модифицированных по Хэншу [1], эта проблема подробно обсуждена и изучена, например, в [2, 3], где определены оптимальные параметры селективных резонаторов с точки зрения ширины линии и ее стабильности. При этом рассматривались нестабильности ширины линии выходного излучения, связанные со спектральной стабильностью полосы пропускания резонатора в масштабах времени $t > t_{\text{имп}}$.

Нестабильность спектральных и пространственных характеристик в течение импульса генерации оказывает негативное влияние на характеристики преобразователей частоты, ВРМБ-компрессоров и других нелинейных устройств, использующих перестраиваемое излучение.

В настоящей работе изучено влияние термически наведенной неоднородности активной среды, обусловленной диссипацией энергии возбуждения в активной зоне, на изменение спектра генерации лазера на красителях с эксимерной накачкой.

Для эксимерных лазерных систем характерно время возбуждения ~ 10 —40 нс, что позволяет не учитывать накопление молекул красителя в триплетном состоянии. Кроме того, за такие короткие времена не успевает измениться плотность в активной зоне с характерным поперечным размером 0,1—0,3 мм. Пренебрегая влиянием изменения поляризуемости молекул красителя в возбужденном состоянии на показатель преломления раствора, димеризацией и т. п., основным следствием локального нагрева активной среды считаем изменение показателя преломления растворителя вследствие повышения температуры. Учет всех или хотя бы части релаксационных механизмов, приводящих к тепловыделению, очень сложен, поэтому в дальнейших наших рассуждениях будем принимать во внимание лишь стоковые потери излучения накачки $(\omega_{\text{нак}} - \omega_{\text{ген}}) / \omega_{\text{нак}}$, поддающиеся простому количественному учету. Изменение показателя преломления dn , вызванное изменением температуры dT , распадается на части

$$dn = \left(\frac{\partial n}{\partial T} \right)_\rho dT + \frac{\partial n}{\partial \rho} \frac{\partial \rho}{\partial T} dT.$$

Первая часть, обусловленная изменением температуры при постоянной плотности, дает вклад в т. н. быструю составляющую dn ; время проявления изменения этой составляющей $\leq 10^{-10}$ с [4]. Вторая часть dn — медленная. Она обусловлена изменением плотности, скорость которой равна скорости звука в данной среде, так что время проявления этой компоненты в масштабах активной зоны лазера на красителях $\geq 10^{-7}$ с. Быстрая часть dn для большинства жидкостей на один-два порядка меньше медленной и в обычных условиях ею пренебрегают, однако в наносекундном масштабе времен, когда медленной составляющей можно пренебречь, именно быстрая компонента определяет условия распространения импульса генерации в активной среде.

Полуэмпирическая оценка ожидаемого эффекта

При поперечной накачке лазера на красителях (ЛК) излучением ТЕА-эксимерного лазера в активной зоне ЛК формируется распределение интенсивности (рис. 1)

$$I(y, z) = I_0 \exp\left(-\frac{y^2}{\omega^2} - kz\right), \quad (1)$$

ω — размер пучка накачки в активной среде ЛК, k — коэффициент поглощения активной среды ЛК.



Рис. 1. Выбранная система координат и распределение интенсивности накачки по ортам при поперечном возбуждении активной среды.

Распределение энергии, выделяемой в среде, может быть представлено как:

$$Q(y, z) = AcQ \exp\left(-\frac{y^2}{\omega^2} - kz\right), \quad (2)$$

где c , Q — теплоемкость и плотность растворителя,

$$A = \frac{kQ}{\sqrt{\pi} LcQ\omega}, \quad Q = \int_{-\infty}^L \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} Q(x, y, z) dx dy dz,$$

Q — полная выделенная энергия, L — длина активной зоны.

Для дальнейшего рассмотрения важно определить механизм формирования тепловой неоднородности в активной зоне, в связи с чем следует оценить среднее расстояние между молекулами красителя в растворе

$$a = \sqrt[3]{\frac{3M}{4nN_A}} \quad (3)$$

где M — молекулярный вес красителя, n — концентрация, N_A — число Авогадро.

При используемых концентрациях $1-3 \cdot 10^{-3}$ моль/л $a \sim 10-15$ нм. Таким образом, общее число молекул красителя, участвующее в импульсе лазера, $\sim 10^{15}$ (размер активной зоны $0,25 \times 0,25 \times 20$ мм³), т. е. при энергии импульса накачки ~ 5 мДж на каждую молекулу красителя приходится по пяти актов поглощения и испускания. Такую молекулу, релаксирующую за $10^{-12}-10^{-13}$ с из высоковозбужденного S_n -состояния на верхний лазерный уровень, можно рассматривать как точечный источник тепла, рассасывание которого происходит по уравнению теплопроводности с характерным временем

$$t_0 = \frac{a^2 c \rho}{4\gamma \ln 2}, \quad (4)$$

где γ — коэффициент теплопроводности. Для этилового спирта ($c = 0,6$, $\rho = 0,8$, $\gamma = 4,3 \cdot 10^{-4}$ ед. СГС) [5] получаем $t_0 \sim 0,4$ нс, что много короче импульса накачки. Таким образом, для импульсов наносекундной длительности искажение активной среды можно рассматривать только как функцию поглощенной энергии накачки. При этом распределение температуры в активной среде ЛК можно записать так:

$$\Delta T(t) = \frac{k E_{\text{нак}}(t) (\omega_{\text{нак}} - \omega_{\text{ген}})}{2L \sqrt{\pi} \omega \omega_{\text{нак}}} \exp\left(-\frac{y^2}{\omega^2} - kz\right), \quad (5)$$

где $E_{\text{нак}}(t)$ — энергия импульса накачки. Убывание во времени этой макронеоднородности температуры описывается формулой (4), где вместо a используется ω .

Теперь можно записать изменение показателя преломления в следующем виде:

$$\Delta n = \left(\frac{\partial n}{\partial T}\right)_\rho \frac{k E_{\text{нак}}(t) (\omega_{\text{нак}} - \omega_{\text{ген}})}{L \sqrt{\pi} c \rho \omega \omega_{\text{нак}}} \exp\left(-\frac{y^2}{\omega^2} - kz\right). \quad (6)$$

Распространение луча света в среде с неоднородным показателем преломления описывается следующей формулой [6]:

$$K_p = \frac{1}{r} = j \cdot \text{grad}(\ln n), \quad (7)$$

где K_p — кривизна, r — радиус кривизны.

Для независимых координат y, z получаем:

$$K_{py} = 2 \left(\frac{\partial n}{\partial T}\right)_\rho \frac{ky E_{\text{нак}} (\omega_{\text{нак}} - \omega_{\text{ген}})}{\omega^3 L c \rho \sqrt{\pi} n \omega_{\text{нак}}} \exp\left(-\frac{y^2}{\omega^2} - kz\right),$$

$$K_{pz} = \left(\frac{\partial n}{\partial T}\right)_\rho \frac{k^2 E_{\text{нак}} (\omega_{\text{нак}} - \omega_{\text{ген}})}{\omega L c \rho \sqrt{\pi} n \omega_{\text{нак}}} \exp\left(-\frac{y^2}{\omega^2} - kz\right). \quad (8)$$

В приближении $r \gg L$ угол отклонения луча, распространяющегося через такую среду, выражается так:

$$\Delta \Theta_{y,z} = n L K_{py,z}. \quad (9)$$

В лазере на красителях с резонатором Хэнша отклонение пучка на выходе из активной среды на угол ΔQ в плоскости дисперсии селективного элемента приведет к изменению длины волны генерации:

$$\Delta \lambda = \lambda \frac{\Delta \Theta}{M \text{tg} \Theta}, \quad (10)$$

где M — увеличение внутррезонаторного расширителя пучка. В на-

шем случае конфигурация лазера такова, что направление дисперсии селективного элемента совпадает с осью z.

Если в качестве растворителя используется этиловый спирт [7]

$$\left(\frac{\partial n}{\partial T}\right)_p = 0,24 \cdot 10^{-4},$$

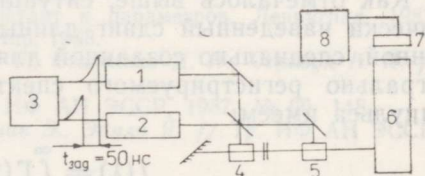
то на длине волны 580 нм при накачке ХеСl-лазером с $\lambda = 308$ нм при $k = 30 \text{ см}^{-1}$ и $\omega = 0,017 \text{ см}$ имеем для энергии накачки ~ 8 мДж и увеличение $M = 40$ сдвиг длины волны генерации $\sim 0,2 \text{ \AA}$.

Таким образом, градиент показателя преломления в плоскости дисперсии решетки приводит к сдвигу длины волны генерации, а в перпендикулярной плоскости к неустойчивости резонатора [8] и падению эффективности генерации.

Эксперимент

Для наблюдения эффекта сдвига длины волны генерации лазера на красителях с импульсной накачкой была специально создана искусственная ситуация, при которой нагрев среды и формирование пробного пучка осуществлялись разными импульсами накачки, следующими друг за другом с регулируемой задержкой. Блок-схема экспериментальной установки приведена на рис. 2. В качестве объекта исследования использовался лазер на красителях ВЛ-10 [9] с активной средой родамин 6Ж в этаноле. Задающий генератор лазера выполнен по модифицированной схеме Хэнша с четырехпризменным ахроматическим расширителем пучка ($40\times$) и дифракционной решеткой (600 штрихов/мм), работающей в высоких порядках. Длина активной зоны кюветы генератора ~ 20 мм. Система прокачки обеспечивает смену раствора красителя в зоне возбуждения за ~ 10 мс.

Рис. 2. Схема экспериментальной установки. 1, 2 — эксимерные лазеры, 3 — блок запуска и задержки, 4 — кювета генератора лазера на красителях ВЛ-10, 5 — усилитель лазера ВЛ-10, 6 — спектрограф, 7 — линейка ПЗС, 8 — многоканальный анализатор ТН-7200.



Накачка осуществлялась двумя синхронизованными эксимерными лазерами ЭЛИ-3 и ЭЛИ-73 (точность синхронизации ± 3 нс), работающими с частотой 10 Гц.

Первый импульс накачки создавал тепловую неоднородность в активной зоне генератора и его энергия в эксперименте варьировалась, второй импульс накачки формировал пробный пучок в генераторе и одновременно накачивал стробирующий усилитель, где пробный пучок усиливался и затем направлялся на входную щель спектрографа.

Для регистрации спектральных характеристик пробного пучка был использован спектрометр, изготовленный на базе автоколлимационной трубы УФ-90 с дифракционной решеткой-эшелле (75 штрихов/мм) и углом блеска 63° , позволяющий получить в видимом диапазоне при работе в 40—60 порядках дифракции разрешение $3\text{--}5 \cdot 10^5$. Изображение, формируемое в фокальной плоскости спектрометра, проецировалось микрообъективом с увеличением $8\times$ на ПЗС-линейку А-1033. Линейная дисперсия системы на длине волны 0,6 мкм составляла 15 пм/мм ($2,5 \cdot 10^{-1} \text{ пм/канал}$). Сформированный видеосигнал через специально разработанный интерфейс поступал на многоканальный анализатор ТН-7200, где получаемые моноимпульсные спектры могли быть отде-

лены от фона, накоплены, проинтегрированы, сравнены и т. д. Пороговая чувствительность спектрометра, определяемая малой световой чувствительностью используемой линейки (10^5 фотон/канал), была, однако, достаточна для измерения характеристик лазерного излучения. Динамический диапазон системы регистрации, обусловленный в основном параметрами интерфейса, был равен 200.

Результаты эксперимента представлены на рис. 3, где приведена зависимость отклонения длины волны генерации $\Delta\lambda$ для лазера ВЛ-10 от энергии предимпульса $E_{\text{нак}}$ с использованием красителя родамин 6Ж в этаноле при концентрации 0,7 г/л. Лазер генерировал на длине волны 585 нм, решетка работала в 5 порядке дифракции ($\Theta = 61,3^\circ$). Для каждого значения $E_{\text{нак}}$ измерения велись при усреднении по 50 импульсам, что позволило определить центр контура генерации с точностью до $\pm 0,5$ пм.

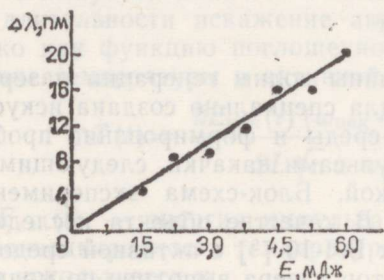


Рис. 3. Зависимость сдвига длины волны генерации пробного импульса от энергии предимпульса накачки (λ генерации 585 нм).

Одновременно со сдвигом по длине волны наблюдалось асимметричное уширение контура спектральной линии, составляющее при $E_{\text{нак}} = 4,5$ мДж около 50% от ее ширины при одноимпульсном возбуждении.

Как отмечалось выше, ситуация, при которой хорошо заметен термически наведенный сдвиг длины волны генерации, является искусственной, специально созданной для наблюдения этого эффекта. Для интегрально регистрируемого спектрального распределения единичного импульса имеем:

$$I(\lambda) = \int_0^{\infty} \Gamma(\lambda, t) \cdot P_{\text{ген}}(t) dt, \quad (11)$$

где $\Gamma(\lambda, t)$ — контур пропускания резонатора, $P_{\text{ген}}(t)$ — мгновенное значение выходной мощности генерации.

Термически наведенный градиент показателя преломления растворителя в направлении оси z влияет на контур пропускания резонатора, а в направлении оси y — на мгновенное значение выходной мощности из-за формирования отрицательной цилиндрической линзы, приводящей к неустойчивости резонатора и уменьшению выходной мощности [8]. Таким образом, в реальном лазере мощность генерации значительно падает при тех значениях поглощаемой энергии, которые необходимы для заметного сдвига полосы пропускания резонатора, и вклад в интегральный спектр генерации излучения на смещенных термическими искажениями длинах волн достаточно мал. Можно сказать, что отрицательная линза, возникающая на оси y является своеобразным предохранителем, ограничивающим генерацию лазера на смещенных длинах волн.

Борьба с влиянием термических искажений активной среды затруднена, поскольку поперечные размеры зоны возбуждения определяются при оптимизации спектральных характеристик излучения. Из существующих растворителей только вода имеет меньший коэффициент

$(dn/dT)_p$, но генерационные характеристики красителей, растворенных в воде, гораздо хуже, чем при растворении в спирту. Поэтому, работая с лазерами на красителях с эксимерной накачкой, следует ограничить энергию импульса возбуждения задающего генератора 5—6 мДж для синих и 3—4 мДж для красных красителей. Указанные энергии вполне достаточны при длительностях импульса накачки 15—30 нс и только для длительностей ~ 100 нс, когда получаемые при таких энергиях накачки мощности возбуждения будут близки к пороговым, могут возникнуть затруднения.

При повороте плоскости дисперсии селективного элемента на 90° в плоскости x, y проявление термических эффектов будет иметь другие особенности; наведенная цилиндрическая линза должна привести к симметричному уширению линии генерации, а падение эффективности лазера будет обусловлено сдвигом пучка и разъюстировкой резонатора в перпендикулярной плоскости.

Для усилителя справедливы те же закономерности, что и для задающего генератора, однако, поскольку концентрация красителя в нем меньше, то больше межмолекулярное расстояние и соответственно время релаксации энергии в среду может составлять несколько наносекунд. Поскольку углы отклонения пучка пропорциональны кубу поперечных размеров возбужденной зоны (при пропорциональном увеличении ω и $1/k$), то для первого усилителя с рекомендованным трехкратным уменьшением концентрации красителя и дефокусировкой накачки предельные дозы возбуждения составляют 50—100 мДж.

ЛИТЕРАТУРА

1. Hänch, T. W. // Appl. Opt., 1972, 11, 895.
2. Berik, E., Berik, I., Davydenko, V. // Opt. Commun., 1988, 67, № 2, 129.
3. Берик Е. // Препринт F-35, ИФ АН ЭССР, Тарту, 1986.
4. Шапиро С. Сверхкороткие импульсы. М., Мир, 1981.
5. Субботина Е. П. Сборник физических констант и параметров. Ленинград, 1987.
6. Борн М., Вольф В. Физическая оптика. М., Мир, 1968.
7. Андреев Р. Б., Гулидов С. С., Каменцев А. Г., Стаселько Д. И., Стригун В. П. // Опт. и спектр., 1983, 54, 350.
8. Берик Е., Берик И., Давыденко В. // Тр. ИФ АН ЭССР, 1987, № 60, 148.
9. Берик Е., Михельсоо В., Раамат Р., Урбаник Э., Эдула Я. // Тр. ИФ АН ЭССР, 1984, № 56, 93.

Институт физики
Академии наук Эстонской ССР

Поступила в редакцию
27/III 1989

Eugeni BERIK, Vladimir DAVYDENKO

SOOJUSEFECTIDE MÕJU EKSIMEERPUMPAMISEGA VÄRVUSLASERITE GENERATSIOONI LAINEPIKKUSE DÜNAAMILISELE STABIILSUSELE

On leitud eksimeerpumpamisega värvuslaseri generatsiooni lainepikkuse dünaamilise nihke efekt ja seda uuritud. Nimetatud efekt on seotud aktiivse keskkonna termilise moonutusega ning selle ilmnemisele eksimeerpumpamisega värvuslaserites aitab kaasa generatsiooni suur Stokesi nihe ja lahusti nanosekundiline termaliseerumine ergastusloonis.

Eugeni BERIK and Vladimir DAVYDENKO

INFLUENCE OF THE THERMAL EFFECTS ON THE DYNAMICAL STABILITY OF LASING WAVELENGTH OF AN EXCIMER-PUMPED PULSED DYE LASER

An effect of dynamical shift of lasing wavelength of an excimer-pumped dye laser caused by the thermal distortion of active medium is studied. This effect appears because of large Stokes' shift and nanosecond thermalization of excitation in active zone of an excimer-pumped dye laser.