

Fyzika laserových generátorů

Kvantová soustava s vibračně rozšířenými hladinami

Jan Šulc

Katedra fyzikální elektroniky
České vysoké učení technické v Praze
jan.sulc@fifi.cvut.cz

4. března 2021

Einsteinovy relace pro A, B koeficienty

- ▶ Dvouhadinová kvantová soustava – „úzké hladiny“
 - ▶ Energie E_1 a E_2 kde $E_2 > E_1$ a degenerace hladin jsou g_1 a g_2
 - ▶ Interakce se zářením o frekvenci $\omega_{21} = 2\pi\nu_{21} = (E_2 - E_1)/\hbar$
 - ▶ Hustota energie záření na jednotku objemu a jednotkový interval frekvencí $u(\omega)$
 - ▶ Rychlost absorpce $B_{12}u(\omega_{21})$
 - ▶ Rychlost stimulované emise $B_{21}u(\omega_{21})$
 - ▶ Rychlost spontánní emise na jednotkový frekvenční interval A_{21}
 - ▶ Podle Einsteina platí:

$$g_1 B_{12} = g_2 B_{21} \quad \text{a} \quad A_{21}/B_{21} = 16\pi^2 \hbar (\omega_{21}/2\pi c)^3 = 8\pi h \nu^3 n^3 / c_0^3$$

- ▶ Účinný průřez $\sigma = B\hbar\omega_{21}/c$
- ▶ Dvouhadinová kvantová soustava – „širší hladiny“
 - ▶ Účinný průřez $g_1\sigma_{12} = g_2\sigma_{21}$

$$\sigma_{21}(\omega) = \frac{B_{21}\hbar\omega_{21}}{c} g(\omega) = \frac{A_{21}}{8\pi} \left(\frac{2\pi c}{\omega_{21}} \right)^2 g(\omega)$$

$g(\omega)$ – normalizovaný tvar čáry – $\int g(\omega) d\omega = 1$

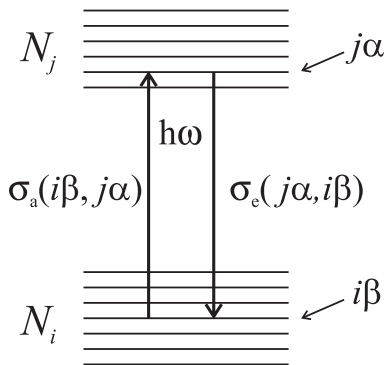
- ▶ Lorenzovská čára

$$\sigma_{21} = \frac{A_{21}\lambda_0^2}{4\pi^2 n^2 \Delta\nu} = \frac{A_{21}\lambda_0^4}{4\pi^2 n^2 c \Delta\lambda}$$

- ▶ Gaussovská čára

$$\sigma_{21} = \frac{A_{21}\lambda_0^2}{4\pi^2 n^2 \Delta\nu} \left(\frac{\ln 2}{\pi} \right)^{1/2}$$

- ▶ Obecné „široké“ spektrum? Teplota?



Předpoklady

- ▶ N_t — celková hustota kvantových soustav
- ▶ $N_{i,j}$ — pásy hladin $\sum_j N_j = N_t$
- ▶ $E_{i\beta}, E_{j\alpha}$ – Energie podhladin pásů i, j , jejich degeneraci zanedbáváme
- ▶ Platí princip detailní rovnováhy:

$$\sigma_a(i\beta, j\alpha) = \sigma_e(j\alpha, i\beta)$$

- ▶ Čas potřebný pro ustavení tepelné rovnováhy v rámci každého pásu je krátký v porovnání s dobou života různých pásů
- ▶ Zanedbáme nezářivé přechody

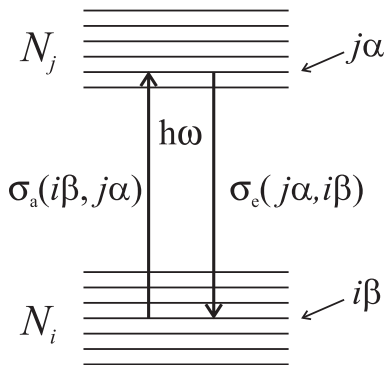
- ▶ Součinitel zesílení na dané frekvenci:

$$g_{i,j}(\omega) = N_j\sigma_{ji}(\omega) - N_i\sigma_{ij}(\omega)$$

$\sigma_{ji}(\omega)$ – efektivní součinitel stim. emise na frekvenci ω

$\sigma_{ij}(\omega)$ – efektivní součinitel absorpce na frekvenci ω

Princip reciprocity – zobecnění vztahu $B_{12} = B_{21}$



- ▶ Pravděpodobnost obsazení stavu s energií $E_{j\alpha}$ při skutečné rovnováze při teplotě T

$$p_{j\alpha} = \frac{\exp(-E_{j\alpha}/kT)}{\sum_i \sum_{\beta} \exp(-E_{i\beta}/kT)}$$

- ▶ Hustota stavů s energií $E_{j\alpha}$ je $p_{j\alpha} N_t$, tj.:

$$N_j = N_t \sum_{\alpha} p_{j\alpha}$$

- ▶ Součinitel absorpce na frekvenci ω :

$$N_i \sigma_{ij}(\omega) = N_t \sum_{\alpha, \beta} p_{i\beta} \sigma_a(i\beta, j\alpha) \delta(E_{j\alpha} - E_{i\beta} - \hbar\omega)$$

- ▶ Poměr pravděpodobnosti absorpce a emise:

$$\frac{N_i \sigma_{ij}(\omega)}{N_j \sigma_{ji}(\omega)} = \frac{\sum_{\alpha, \beta} p_{i\beta} \sigma_a(i\beta, j\alpha) \delta(E_{j\alpha} - E_{i\beta} - \hbar\omega)}{\sum_{\alpha, \beta} p_{j\alpha} \sigma_e(j\alpha, i\beta) \delta(E_{j\alpha} - E_{i\beta} - \hbar\omega)}$$

- ▶ Přitom:

$$p_{i\beta} \delta(E_{j\alpha} - E_{i\beta} - \hbar\omega) = p_{j\alpha} \exp\left[\underbrace{(E_{j\alpha} - E_{i\beta})/kT}_{\hbar\omega}\right] \delta(E_{j\alpha} - E_{i\beta} - \hbar\omega)$$

- ▶ Poměr „součinitele“ absorpce a emise:

$$\frac{N_i \sigma_{ij}(\omega)}{N_j \sigma_{ji}(\omega)} = \frac{\sum_{\alpha, \beta} p_{i\beta} \sigma_a(i\beta, j\alpha) \delta(E_{j\alpha} - E_{i\beta} - \hbar\omega)}{\sum_{\alpha, \beta} p_{j\alpha} \sigma_e(j\alpha, i\beta) \delta(E_{j\alpha} - E_{i\beta} - \hbar\omega)}$$

- ▶ Přitom:

$$p_{i\beta} \delta(E_{j\alpha} - E_{i\beta} - \hbar\omega) = p_{j\alpha} \exp \left[\underbrace{(E_{j\alpha} - E_{i\beta}) / kT}_{\hbar\omega} \right] \delta(E_{j\alpha} - E_{i\beta} - \hbar\omega)$$

- ▶ ... plus princip detailní rovnováhy $\sigma_a(i\beta, j\alpha) = \sigma_e(j\alpha, i\beta)$
- ▶ Dostaneme:

$$\frac{N_i \sigma_{ij}(\omega)}{N_j \sigma_{ji}(\omega)} = \exp(\hbar\omega / kT) \frac{\sum_{\alpha, \beta} p_{j\alpha} \sigma_e(j\alpha, i\beta) \delta(E_{j\alpha} - E_{i\beta} - \hbar\omega)}{\sum_{\alpha, \beta} p_{j\alpha} \sigma_e(j\alpha, i\beta) \delta(E_{j\alpha} - E_{i\beta} - \hbar\omega)}$$

- ▶ Princip reciprocity:

$$\sigma_{ij}(\omega) = \sigma_{ji}(\omega) \exp[\hbar(\omega - \mu_{ij}) / kT],$$

kde

$$\exp(-\hbar\mu_{ij} / kT) = (N_j / N_i)_{eq}$$

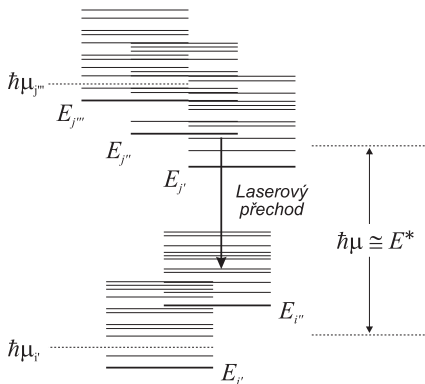
- ▶ $\hbar\mu_{ij}$ – *tepelně závislý excitační potenciál* odpovídající čisté volné energii potřebné pro excitaci iontu příměsi ze systému hladin i na j při zachování počáteční teploty dielektrika T .

Princip reciprocity – excitační potenciál $\hbar\mu_{ij}$

- ▶ Stanovení $\hbar\mu_{ij}$ obecně problém
- ▶ Odhad pomocí tzv. bezfononové energie – rozdíl energií nejnižších hladin pásů – čistě elektronové přechody

$$\hbar\mu_{ij} \cong E_j - E_i$$

- ▶ Změna elektronových stavů musí jen slabě rušit vibrační stavy. Přiblížení dobré pro pokojové teploty.



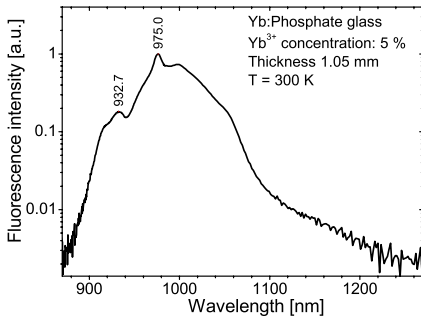
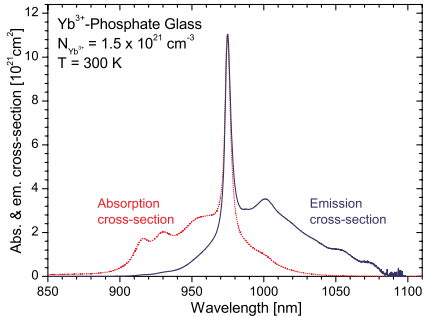
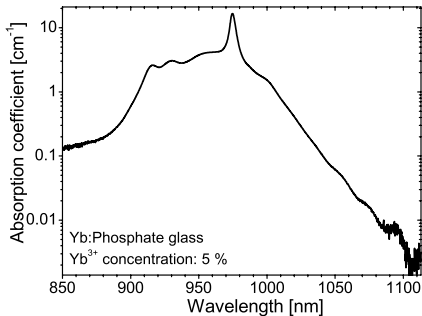
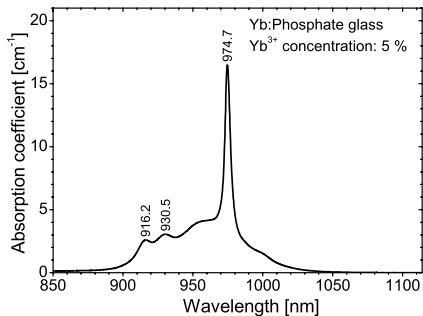
- ▶ Více energeticky vázaných elektronových stavů

$$\hbar\mu = -kT \times \left[\ln \sum_j \exp\left(-\frac{\hbar\mu_j}{kT}\right) - \ln \sum_i \exp\left(-\frac{\hbar\mu_i}{kT}\right) \right]$$

- ▶ Aproximace:

$$E^* = -kT \times \left[\ln \sum_j \exp\left(-\frac{E_j}{kT}\right) - \ln \sum_i \exp\left(-\frac{E_i}{kT}\right) \right],$$

Příklad – Yb:sklo



Zobecnění vztahu mezi B a A

- ▶ Bezrozměrná **fluorescenční funkce** $f_{ji}(\vec{k}_\alpha, \omega)$ je definovaná tak, aby $f_{ji}(\vec{k}_\alpha, \omega) d\Omega_{\vec{k}_\alpha}$ byla průměrná intenzita toku fotonů za sekundu *na jednotkový frekvenční interval* α -polarizovaného záření na frekvenci ω emitovaného do prostorového úhlu $d\Omega_{\vec{k}}$ v důsledku spontánního zářivého z pásu j na níže ležící pás i .
- ▶ Jestliže τ_{ij} je doba života spojená se spontánní emisí pro tento přechod, potom

$$\tau_{ji}^{-1} = \sum_{\alpha} \int_{4\pi} d\Omega_{\vec{k}_\alpha} \int_0^{\infty} \frac{d\omega}{2\pi} f_{ji}(\vec{k}_\alpha, \omega)$$

- ▶ Nechť $\rho(\vec{k}_\alpha, \omega) d\Omega_{\vec{k}}$ je hustota módů α -polarizovaného záření s frekvencí ω na jednotku objemu a na jednotkový interval frekvencí, šířících se v prostorovém úhlu $d\Omega_{\vec{k}_\alpha}$, potom:

$$\rho(\vec{k}_\alpha, \omega) = \left[\frac{\omega n_\alpha(\omega)}{2\pi c} \right]^2 v_g^{-1}(\vec{k}_\alpha, \omega) \quad \begin{array}{l} n_\alpha(\omega) \text{ je index lomu} \\ v_g(\vec{k}_\alpha, \omega) \text{ je grupová rychlost} \end{array}$$

- ▶ Průměrné obsazení každého zářivého módu s frekvencí ω fotonu je dáno Bose-Einstein-Planckovou distribuční funkcí

$$\phi(\omega) = [\exp(\hbar\omega/kT) - 1]^{-1},$$

- ▶ $\phi(\omega)\rho(\vec{k}_\alpha, \omega)$ je průměrná hustota fotonů s frekvencí ω a polarizací α , vztažená na jednotkový prostorový úhel a na jednotkový frekvenční interval

Zobecnění vztahu mezi B a A

- ▶ Rychlost spontánní emise pro přechod $j \rightarrow i$ do módu (\vec{k}_α, ω)

$$f_{ji}(\vec{k}_\alpha, \omega) N_j$$

- ▶ Rychlost stimulované emise záření do módu (\vec{k}_α, ω) je:

$$\underbrace{\phi(\omega) \rho(\vec{k}_\alpha, \omega) v_g(\vec{k}_\alpha, \omega) \sigma_{ji}(\vec{k}_\alpha, \omega)}_{\text{rovnovážný tok fotonů } (\vec{k}_\alpha, \omega)} N_j$$

- ▶ Rychlost absorpce záření z módu (\vec{k}_α, ω) je:

$$\phi(\omega) \rho(\vec{k}_\alpha, \omega) v_g(\vec{k}_\alpha, \omega) \sigma_{ij}(\vec{k}_\alpha, \omega) N_i$$

- ▶ V rovnováze je rychlost emise = rychlosti absorpce

$$\left[f_{ji}(\vec{k}_\alpha, \omega) + \sigma_{ji}(\vec{k}_\alpha, \omega) \rho(\vec{k}_\alpha, \omega) \phi(\omega) v_g(\vec{k}_\alpha, \omega) \right] N_j = \sigma_{ij}(\vec{k}_\alpha, \omega) \rho(\vec{k}_\alpha, \omega) \phi(\omega) v_g(\vec{k}_\alpha, \omega) N_i$$

$$f_{ji}(\vec{k}_\alpha, \omega) + \sigma_{ji}(\vec{k}_\alpha, \omega) \rho(\vec{k}_\alpha, \omega) \phi(\omega) v_g(\vec{k}_\alpha, \omega) = \sigma_{ij}(\vec{k}_\alpha, \omega) \exp(\hbar\omega/kT) \rho(\vec{k}_\alpha, \omega) \phi(\omega) v_g(\vec{k}_\alpha, \omega)$$

$$f_{ji}(\vec{k}_\alpha, \omega) = \sigma_{ji}(\vec{k}_\alpha, \omega) \rho(\vec{k}_\alpha, \omega) v_g(\vec{k}_\alpha, \omega)$$

$$f_{ji}(\vec{k}_\alpha, \omega) = \sigma_{ji}(\vec{k}_\alpha, \omega) \left[\frac{\omega n_\alpha(\omega)}{2\pi c} \right]^2$$

- ▶ Intenzita změřená spektrometrem $I_{ij}(\vec{k}, \omega)$ je úměrná výkonu vyzářenému na dané frekvenci. Funkce $f_{ji}(\vec{k}, \omega)$ je úměrná počtu fotonů na dané frekvenci, tedy:

$$f_{ji}(\vec{k}_\alpha, \omega) = C \frac{I_{ji}(\vec{k}_\alpha, \omega)}{\hbar\omega}$$

- ▶ Konstanta C charakterizuje měřicí systém:

$$C = \left(\tau_{ji} \sum_{\alpha} \int_{4\pi} d\Omega_{\vec{k}_\alpha} \int_0^{\infty} \frac{d\omega}{2\pi} \frac{I_{ji}(\vec{k}_\alpha, \omega)}{\hbar\omega} \right)^{-1}$$

- ▶ Dosadíme do vztahu pro σ_{ji} :

$$\sigma_{ji}(\vec{k}_\alpha, \nu) = \frac{I_{ji}(\vec{k}_\alpha, \nu)c^2}{\tau_{ji}\nu^3 n_{\alpha}^2(\vec{k}_\alpha, \nu)} \left(\sum_{\alpha} \int_{4\pi} d\Omega_{\vec{k}_\alpha} \int_0^{\infty} d\nu \frac{I_{ji}(\vec{k}_\alpha, \nu)}{\nu} \right)^{-1}$$

- ▶ Přejít k vlnové délce ($-d\lambda/\lambda = d\nu/\nu$, $I(\nu) = \lambda^2 I(\lambda)$):

$$\sigma_{ji}(\vec{k}_\alpha, \lambda) = \frac{\lambda^4}{c\tau_{ji}n_{\alpha}^2(\vec{k}, \lambda)} \frac{\lambda I_{ji}(\vec{k}, \lambda)}{\sum_{\alpha} \int_{4\pi} d\Omega_{\vec{k}_\alpha} \int_0^{\infty} \lambda I_{ji}(\vec{k}_\alpha, \lambda) d\lambda}$$

- ▶ Izotropní prostředí:

$$\sigma_{ji}(\lambda) = \frac{\lambda^4}{8\pi c \tau_{ji} n^2(\lambda)} \frac{\lambda I_{ji}(\lambda)}{\int_0^\infty \lambda I_{ji}(\lambda) d\lambda}$$

- ▶ Umožňuje spočítat emisní účinný průřez i pro přechody, které mají nulovou nebo jen malou absorpci na dolní hladině (většina laserujících přechodů)
- ▶ Oproti principu reciprocity není nutná znalost energie bezfononového přechodu
- ▶ Při reálném použití mnoho komplikací:
 - ▶ Stanovení τ_{ji} (relaxace mezi hladinami j, i v důsledku zářivých přechodů) často není možné v důsledku vlivu dalších přechodů (na jiné hladiny, nezářivé přechody, reabsorpce, překrývání emisních pásů. . .)
 - ▶ Stanovení intenzity fluorescence $I_{ji}(\lambda)$ prakticky nemožné
 - ▶ Spektrální kalibrace spektrometru obvykle není známá a hlavně na krajích citlivosti detektoru (1030 nm pro Si, 1700 nm pro InGaAs, . . .) i úzké čáry silně deformované
 - ▶ Při relaxaci na více hladin je obtížné stanovit podíl intenzity fluorescence pro danou dvojici pásů (pro všechny nižší přechodu bude mít $\sigma_{ji}(\lambda)$ stejný tvar, což neodpovídá principu reciprocity)
 - ▶ V oblasti překryvu emise a absorpce bude křivka $I_{ji}(\lambda)$ ovlivněna reabsorpcí (v místě s malou absorpcí bude $I_{ji}(\lambda)$ nadhodnocena a naopak)
 - ▶ Ve stejné spektrální oblasti může dojít k překrývání emisních pásů různých přechodů
 - ▶ Stanovení disperzní křivky $n(\lambda)$

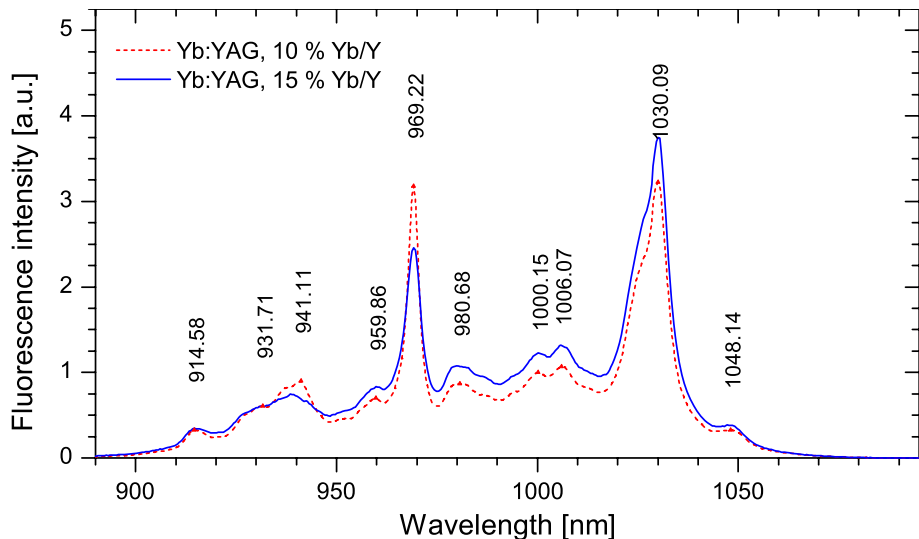
- ▶ Kalibrace spektrometru
- ▶ Omezíme se na úzké spektrální čáry
- ▶ Speciální tvar vzorku (prášek)
- ▶ Cílená excitace konkrétního emisního pásu
- ▶ Modifikace Füchtbauer-Ladenburgovy rovnice

$$\sigma_{ji}(\lambda) = \frac{\eta_{ji}\lambda^4}{8\pi f_j c \tau_f n^2} \frac{\lambda I(\lambda)}{\int_0^\infty \lambda I(\lambda) d\lambda}$$

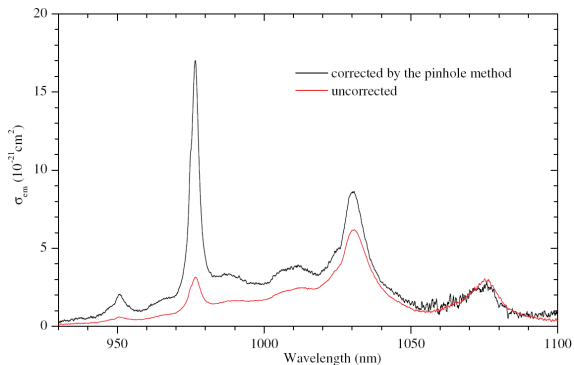
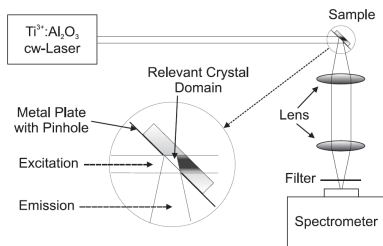
kde f_j je relativní populace startovního pásu/hladiny daná Boltzmanovým rozdělením (pokud by byla struktura hladin složitější) a η_{ji} je kvantová účinnost zářivých přechodů z tohoto pásu na pás i .

- ▶ Eliminace nezářivých přechodů při stanovení τ_f
 - ▶ Měření při nízkých teplotách
 - ▶ Stanovení τ_f z Judd-Ofeltovy teorie
- ▶ Kalibrace $\sigma_{ji}(\lambda)$
 - ▶ Přímé měření σ_{ji} ze zesílení nebo ze saturační intenzity jednom bodě
 - ▶ Porovnáním s výsledky získanými z principu reciprocity v oblasti „rozumného“ překryvu emisního a absorpčního spektra
- ▶ Srovnání výsledků z Füchtbauer-Ladenburgovy rovnice a metody reciprocity je dobré pro ověření správného odhadu parametrů jako koncentrace, radiační doba života (ověření Judd-Ofeltovy teorie), energie bezfononových přechodů. . .

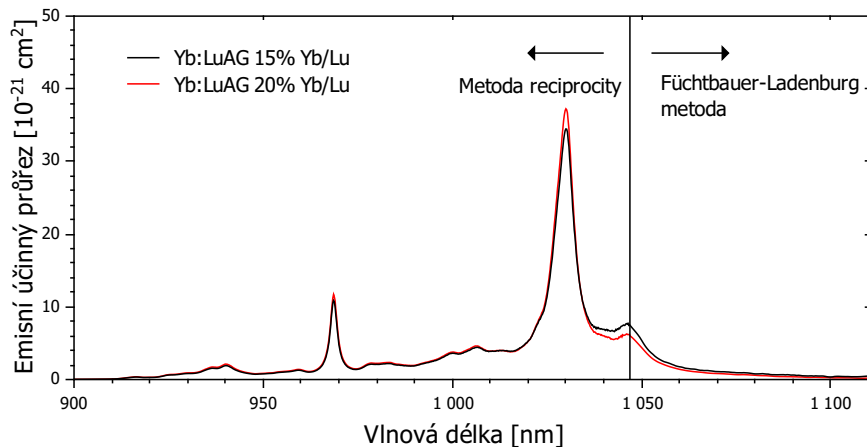
Příklad – Yb:YAG



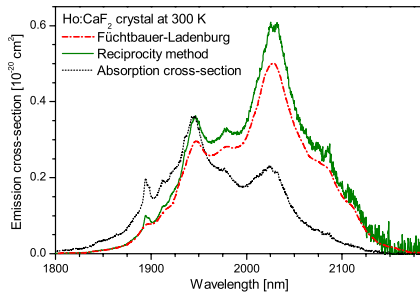
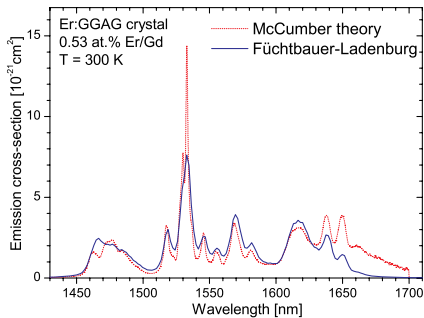
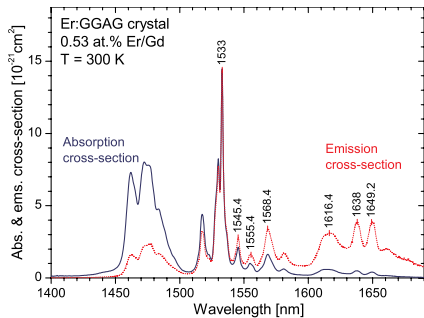
Příklad – Yb:Y₂O₃, pinhole-metoda [Kühn09]



Příklad – Yb:LuAG



Příklad – Er:GGAG a Ho:CaF₂



- ▶ Efektivní součinitel zesílení (zisk) respektive záporně vzatá efektivní absorpce

$$g_{ji}(\vec{k}, \omega, \vec{r}, t) = e_{ji}(\vec{k}, \omega, \vec{r}, t) - a_{ij}(\vec{k}, \omega, \vec{r}, t),$$

- ▶ Dvoupásový model – populace dolní hladiny N_1 , horní N_2 , celková populace $N_t = N_1 + N_2$

$$g_{21}(\omega, \vec{r}, t) = \sigma_{21}(\omega)N_2(\vec{r}, t) - \sigma_{12}(\omega)N_1(\vec{r}, t)$$

- ▶ Princip reciprocity $\sigma_{12}(\omega) = \sigma_{21}(\omega) \exp[\hbar(\omega - \mu_{12})/kT]$, relativní populace hladin $\rho = N_2/N_t$:

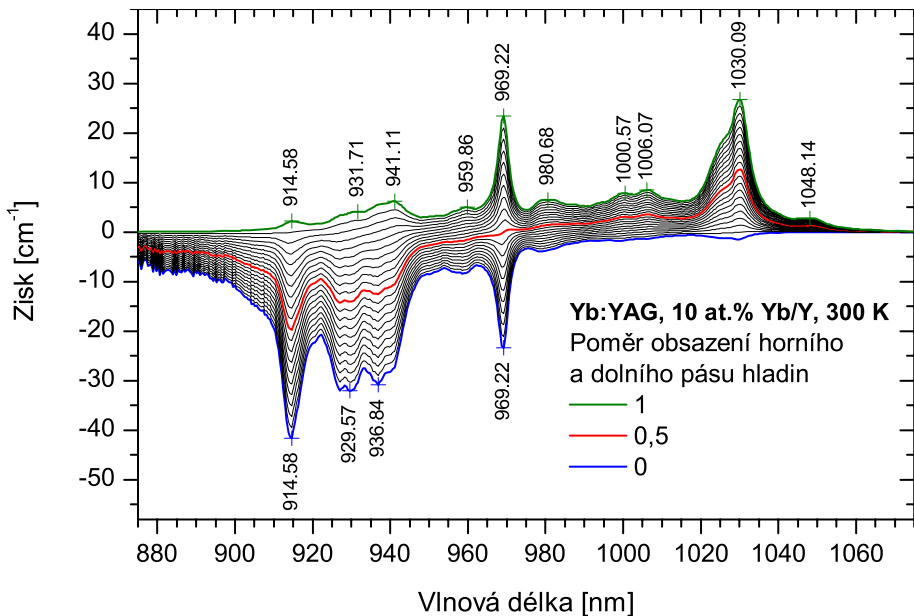
$$\begin{aligned} g_{21}(\omega) &= \sigma_{21}(\omega) \underbrace{(N_2 - N_1 \exp[\hbar(\omega - \mu_{12})/kT])}_{\text{inverze populace hladin } N} \\ &= \underbrace{\sigma_{21}(\omega)N_t}_{\text{max. zesílení}} (\rho - (1 - \rho) \exp[\hbar(\omega - \mu_{12})/kT]) \\ &= \underbrace{\sigma_{12}(\omega)N_t}_{\text{max. absorpce}} (\rho \exp[-\hbar(\omega - \mu_{12})/kT] - (1 - \rho)) \end{aligned}$$

- ▶ Inverze populace hladin vs faktor redukce inverze populace hladin

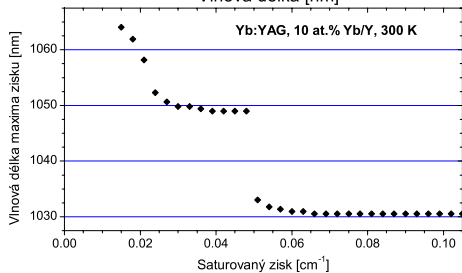
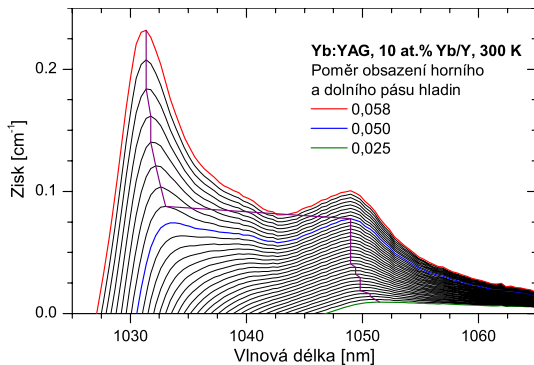
$$\kappa = 1 + g_2/g_1 = 1 + \exp[\hbar(\omega - \mu_{12})/kT]$$

$$N = N_2 - N_1 \exp[\hbar(\omega - \mu_{12})/kT] = N_2 - \frac{g_2}{g_1} N_1 = N_2 - (\kappa - 1)N_1$$

Příklad – Yb:YAG



Příklad – Yb:YAG

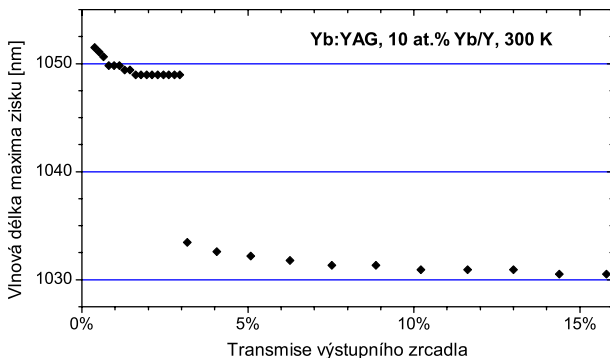


Prahová podmínka a pracovní frekvence laseru

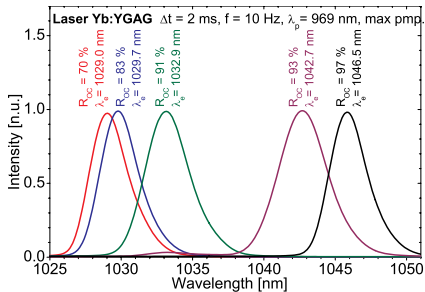
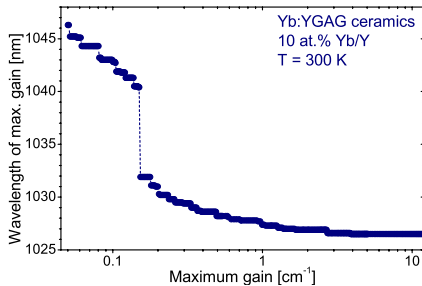
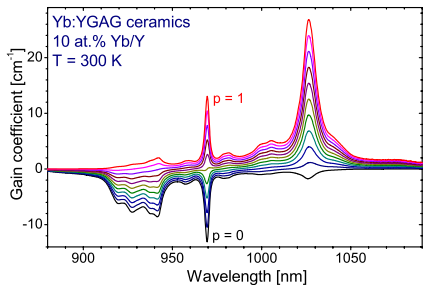
- ▶ Celkové logaritmické ztráty rezonátoru $I(\omega) > 0$, efektivní délka aktivního prostředí L součinitel zesílení $g(\omega)$:

$$Lg(\omega) = I(\omega)$$

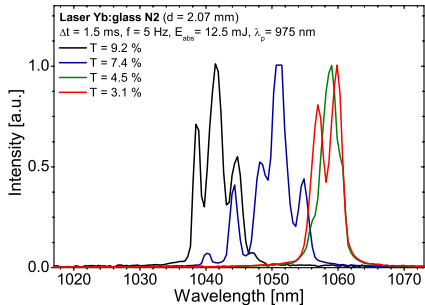
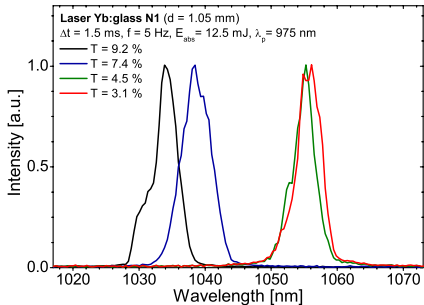
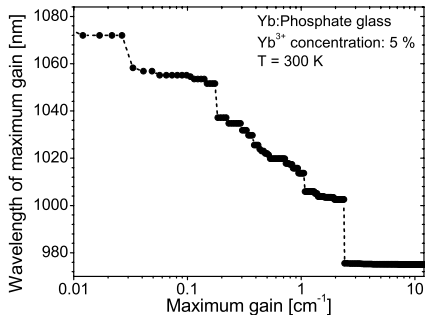
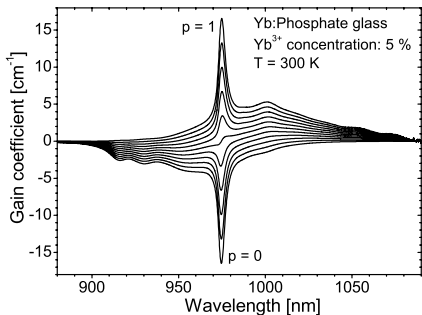
$$\exp[Lg(\omega)] = \sqrt{R^{-1}}$$



Příklad – Yb:YGAG



Příklad – Yb:sklo



- ▶ Podle Einsteina platí:

$$g_1 B_{12} = g_2 B_{21} \quad \text{a} \quad A_{21}/B_{21} = 16\pi^2 \hbar (\omega_{21}/2\pi c)^3 = 8\pi h\nu^3 n^3 / c_0^3$$

- ▶ Účinný průřez $g_1 \sigma_{12} = g_2 \sigma_{21}$

$$\sigma_{21}(\omega) = \frac{B_{21} \hbar \omega}{c} g(\omega) = \frac{A_{21}}{8\pi} \left(\frac{2\pi c}{\omega_{21}} \right)^2 g(\omega)$$








$g(\omega)$ – normalizovaný tvar čáry – $\int g(\omega) d\omega = 1$

- ▶ Princip reciprocity pro efektivní účinné průřezy:

$$\sigma_{ij}(\omega) = \sigma_{ji}(\omega) \exp [\hbar(\omega - \mu_{ij})/kT],$$

- ▶ Füchtbauer-Ladenburgova rovnice pro izotropní prostředí:

$$\sigma_{ji}(\lambda) = \frac{\lambda^4}{8\pi c_0 \tau_{ji} n^2(\lambda)} \frac{\lambda I_{ji}(\lambda)}{\int_0^\infty \lambda I_{ji}(\lambda) d\lambda}$$

-  D. E. McCUMBER: *Einstein relations connecting broadband emission and absorption spectra*, Physical Review, Vol. 136, A954-A957, 1964
-  D. E. McCUMBER: *Theory of phonon-terminated optical masers*, Physical Review, Vol. 134, A299-A306, 1964
-  MARC EICHHORN, MARKUS POLLNAU: *Spectroscopic Foundations of Lasers: Spontaneous Emission Into a Resonator Mode*, IEEE Journal Of Selected Topics In Quantum Electronics, Vol. 21, 9000216, 2015
-  HENNING KÜHN, KLAUS PETERMANN, AND GÜNTER HUBER: *Determination of reabsorption-free emission cross sections of ionic transitions by the pinhole method*, OSA/CLEO/IQEC, CTuEE6, 2009
-  WALTER KOECHNER: *Solid state laser engineering*, Springer-Verlag, Berlin, 1999
-  ORAZIO SVELTO: *Principles of lasers*, Kluwer Academic/Plenum Publishers, Hardbound, 1998
-  Přednášky: <http://people.fjfi.cvut.cz/sulcjan1/FLT/>