

连续波环形染料激光器的波长移动

张铁军

(中国科学院长春光机所, 130022)

提要: 采用速率方程模型分析了连续波环形染料激光器的波长移动问题, 给出了腔内光腔与输出波长的关系式, 并对波长移动的影响因素进行了详细的讨论。理论分析和实验结果基本上是一致的。

关键词: 波长移动, 染料激光器

Wavelength shift of CW ring dye lasers

Zhang Tiejun

(Changchun Institute of Optics and Fine Mechanics, Academia Sinica, Changchun)

Abstract: Wavelength shift of CW ring dye lasers are analysed by means of rate equation model, the relationship between the intracavity and the output wavelength is given and the factors which have effects on the wavelength shift are discussed in detail. The theoretical analysis is essentially in agreement with the experimental results.

Key words: wavelength shift, dye lasers

一、引言

在连续波环形染料激光器中, 一般采用双折射滤光片和法-珀标准具作为腔内波长选择元件, 输出波长 λ_m 不仅由这些波长选择元件决定, 而且还受染料介质的增益光谱参数、激光器谐振腔结构及泵浦特性的影响, λ_m 乃是这些因素综合作用的结果。在一般情况下, 输出波长 λ_m 与波长选择元件的透射峰值波长 λ_0 是不一致的, 存在着波长移动 $\delta\lambda = \lambda_m - \lambda_0$ 。Peterson 等人提出了一种分析方法^[1], 讨论了染料激光器的自调谐问题。Singer 等人^[2]发展了 Peterson 的讨论, 指出在染料激光器中存在波长移动 $\delta\lambda$, 并给出 $\delta\lambda$ 的解析式。但应指出, 在他们的分析中, 都假定了激光上能级分子的浓度 N_1 在整个激光器的激活体积中都是均匀的, 简化了临界反转集居数和阈值泵浦功率的推导, 但并不适用于纵向激励或准纵向激励的连续波染料激光器, 实际上, 激光上能级的集居数 N_1 是与纵向位置坐标 x (x 沿腔轴方向) 有关的, 如果把 N_1 对 x 的依赖性考虑在内, 那么问题的分析要复杂些。

本文采用了适用于纵向激励的速率方程模型, 分析了波长移动问题, 给出了 $\delta\lambda$ 的解析式, 分析了影响 $\delta\lambda$ 的主要因素, 并给出了计算结果和实验结果。

二、速率方程模型与求解

按照文献[3]建立速率方程。染料分子的能级结构如图 1 所示, S_0 为最低单态振-转能级, S_1 为第一激发态, T_1 为最低三重态, 由较高态 S_i 或 T_i ($i>1$) 返回到态 S_1 或 T_1 的过程不予考虑, 同时也不考虑在每个态内的无辐射弛豫过程。在连续波环形染料激光器中采用一些措施(如染料溶液的高速喷流)以消除三重态效应的影响, 故分析中也不考虑三重态 T_1 的影响。

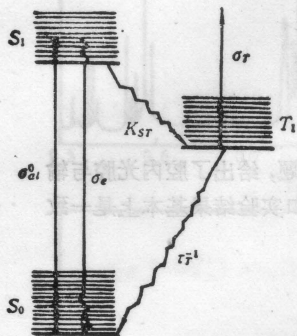


图 1 计算所用的 Rh6G 能级结构简图

设在泵浦波长 λ_p 上的基态吸收截面为 $\sigma_{a_p}^0$, $\sigma_{a_i}^0$ 为从 S_0 到 S_1 的吸收截面, σ_e 为受激发射截面。另外假定泵浦光与振荡激光光束同轴, 并且具有相同的横向分布, 泵浦光在单一方向传播, 而振荡激光在两个相反的方向传播, 分别以 I_p , I_i^+ 和 I_i^- 标记光子通量 (Photons/cm²·s), 总的激光光子通量 $I_l = I_i^+ + I_i^-$, 于是泵浦光的光子传播方程为

$$\frac{n}{c} \frac{\partial I_p}{\partial t} + \frac{\partial I_p}{\partial x} = -I_p \sigma_{a_p}^0 N_0 \quad (1)$$

类似地有振荡激光光子传播方程:

$$\frac{n}{c} \frac{\partial I_i^+}{\partial t} + \frac{\partial I_i^+}{\partial x} = I_i^+ (\sigma_e N_1 - \sigma_{a_i}^0 N_0) \quad (2)$$

态 S_1 上的粒子集居数 N_1 的方程:

$$\frac{dN_1}{dt} = \sigma_{a_p}^0 N_0 I_p - N_1 \frac{1}{\tau_1} - N_1 \sigma_e I_l + N_0 \sigma_{a_i}^0 I_l \quad (3)$$

总的粒子数密度为

$$N = N_0 + N_1 \quad (4)$$

式(1)至(4)就是所要建立的速率方程。其中 N_0 , N_1 为态 S_0 , S_1 上的粒子集居数密度; I_p 为泵浦光子通量, 且 $I_p = P/h\nu \cdot A$; P 为泵浦功率; ν 为泵浦光频率; A 为泵浦区域的面积; τ_1 为态 S_1 的寿命, n 为染料溶液的折射率; h 为 Plank 常数。

为能够解出(1)~(4)式, 还必须考虑激光谐振腔的特性, 以 R_t 表示输出镜的反射率, R_a 表示腔内损耗因子, T 为腔内波长选择元件的总透过程, L 为染料激活区域的长度, 则在稳态条件下, 增益系数 $G(\lambda)$ 满足

$$G(\lambda) R_t (1 - R_a) T = 1 \quad (5)$$

且有

$$G(\lambda) = I_i^+(L) / I_i^+(0) \quad (6)$$

在稳态条件下, 所有的时间微分均为零, 则(1)~(3)式变为

$$N_0 (\sigma_{a_p}^0 I_p + \sigma_{a_i}^0 I_l) = N_1 (1/\tau_1 + \sigma_e I_l) \quad (7)$$

$$dI_p/dx = -I_p \sigma_{a_p}^0 N_0 \quad (8)$$

$$dI_i^+/dx = I_i^+ (\sigma_e N_1 - \sigma_{a_i}^0 N_0) \quad (9)$$

由(8)、(9)两式可分别求得

$$\ln T_p = -\sigma_{ap}^0 \bar{N}_0 L \quad (10)$$

$$\ln G = \sigma_e \bar{N}_1 L - \sigma_{ai}^0 \bar{N}_0 L \quad (11)$$

其中 $\bar{N}_i = \frac{1}{L} \int_0^L N_i dx$, $T_p = I_p(L)/I_p(0)$ 为泵浦光在染料介质上的透过率, 解(10)、(11)两式得

$$T_p = \exp\left(-\frac{\sigma_{ap}^0 \sigma_e}{\sigma_e + \sigma_{ai}^0} NL\right) G^{\frac{\sigma_{ap}^0}{\sigma_e + \sigma_{ai}^0}} \quad (12)$$

又由(8)、(9)两式得

$$\frac{dI_i^+}{I_i^+} = \left(\frac{\sigma_{ai}^0}{\sigma_{ap}^0} - \frac{\sigma_e N_1}{\sigma_{ap}^0 N_0}\right) \frac{dI_p}{I_p} \quad (13)$$

将(7)式代入(13)式可得

$$\frac{dI_i^+}{I_i^+} = \left(\frac{\sigma_{ai}^0}{\sigma_{ap}^0 \sigma_e \tau_1} - I_p\right) \times \frac{1}{\frac{1}{\sigma_e \tau_1} + I_i} \times \frac{dI_p}{I_p} \quad (14)$$

文献[4]中已指明: 腔内总的光子通量 I_i 基本上不随染料介质中的不同位置而异, 因而可以认为 I_i 与纵向坐标 x 无关。对(14)式积分可求出 I_i 的表达式

$$I_i = \frac{I_p(1-T_p)}{\ln G} - \left(1 + \frac{\sigma_{ai}^0 NL}{\ln G}\right) \frac{1}{(\sigma_e + \sigma_{ai}^0) \tau_1} \quad (15)$$

输出波长 λ_m 满足

$$\left. \frac{dI_i}{d\lambda} \right|_{\lambda=\lambda_m} = 0 \quad (16)$$

由(16)式可求得输出波长 λ_m 与腔内波长选择元件透射峰值波长 λ_0 的关系。假设腔内波长选择元件为双折射滤光片, 则透过率 T 为^[5]

$$T = \cos^2 \left[\frac{m\pi(\lambda - \lambda_0)}{\lambda_0} \right] \quad (17)$$

其中 m 为干涉序数, m 与自由光谱范围 $\Delta\lambda_{FSR}$ 有如下关系:

$$m = \lambda_0 / \Delta\lambda_{FSR} \quad (18)$$

将(5)、(12)两式代入(15)式可得

$$I_i = \frac{I_p(\varphi T^{\frac{\sigma_{ap}^0}{\sigma_{ea}}} - 1)}{\ln R + \ln T} - \left(1 - \frac{\sigma_{ai}^0 NL}{\ln R + \ln T}\right) \frac{1}{\sigma_{ea} \tau_1} \quad (19)$$

其中 $\sigma_{ea} = \sigma_e + \sigma_{ai}^0$, $\varphi = \exp\left(-\frac{\sigma_{ap}^0 \sigma_e}{\sigma_{ea}} NL\right) R^{\frac{\sigma_{ap}^0}{\sigma_{ea}}}$, $R = R_t(1 - R_a)$ 。对 T 作级数展开, 并取二级近似, 则

$$T \approx 1 - \left(\frac{m\pi}{\lambda_0}\right)^2 (\lambda - \lambda_0)^2 \quad (20)$$

类似地有

$$T^{\frac{\sigma_{ap}^0}{\sigma_{ea}}} \approx 1 + \frac{\sigma_{ap}^0}{\sigma_{ea}} \left(\frac{m\pi}{\lambda_0}\right)^2 (\lambda - \lambda_0)^2, \quad \ln T \approx \left[-\left(\frac{m\pi}{\lambda_0}\right)^2 (\lambda - \lambda_0)^2\right] \quad (21)$$

将(20)、(21)两式代入(19)式中, 取二级近似可得 $\delta\lambda$ 所满足的方程为

$$C_1 \delta\lambda^2 + C_2 \delta\lambda + C_3 = 0 \quad (22)$$

式中

$$C_1 = -\frac{\theta C_3}{\ln R} + \theta \ln R \left[\frac{\sigma_{ap}^0}{\sigma_{ea}} \frac{d\varphi}{d\lambda} - \frac{1}{\sigma_{ea}} \frac{d\sigma_{ea}}{d\lambda} \left(\varphi \frac{\sigma_{ap}^0}{\sigma_{ea}} + \frac{1}{I_p \sigma_{ea} \tau_1} \right) \right] \quad (23)$$

$$C_2 = -2\theta \left[1 - \varphi \left(1 + \frac{\sigma_{ap}^0}{\sigma_{ea}} \ln R \right) - \frac{\sigma_{ai}^0 NL}{I_p \sigma_{ea} \tau_1} \right] \quad (24)$$

$$C_3 = \ln R \left[\frac{d\varphi}{d\lambda} + \frac{NL}{I_p \sigma_{ea} \tau_1} \frac{d\sigma_{ai}^0}{d\lambda} + \frac{(\ln R - \sigma_{ai}^0 NL)}{I_p \sigma_{ea}^2 \tau_1} \frac{d\sigma_{ea}}{d\lambda} \right] \quad (25)$$

$$\theta = \left(\frac{m\pi}{\lambda_0} \right)^2 \quad (26)$$

$\delta\lambda^2$ 项很小, 取一级近似就足够, 由(22)式知波长移动为

$$\begin{aligned} \delta\lambda &= \lambda_m - \lambda_0 = -C_3/C_2 \\ &= \frac{1}{2} \ln R \left\{ \frac{d\varphi}{d\lambda} + \frac{1}{I_p \sigma_{ea} \tau_1} \left[NL \frac{d\sigma_{ai}^0}{d\lambda} + \frac{(\ln R - \sigma_{ai}^0 NL)}{\sigma_{ea}} \frac{d\sigma_{ea}}{d\lambda} \right] \right\} \left(\frac{\lambda_0}{m\pi} \right)^2 \\ &\quad / \left[1 - \varphi \left(1 + \frac{\sigma_{ap}^0}{\sigma_{ea}} \ln R \right) - \frac{\sigma_{ai}^0 NL}{I_p \sigma_{ea} \tau_1} \right] \end{aligned} \quad (27)$$

这就是波长移动的一般表示。

三、数值计算、讨论和实验结果

数值计算中除了要确定激光器谐振腔等参数外, 还要确定激活介质的参数, 对 Rh6G 必须对实验中得到的 σ_{ai}^0 和 σ_e 的数值给出解析表达式, 而文献中[6, 7]给出的 σ_{ai}^0 、 σ_e 的数值大都不尽相同, 这可能是由于所用样品的纯度不同造成的。本文采用文献[6]的数据, 对每三个数据点用二次曲线拟合, 对整个光谱区域分段给出 σ_{ai}^0 、 σ_e 的解析式。其它参数 $A = 1.56 \times 10^{-5} \text{ cm}^2$; $h = 6.63 \times 10^{-34} \text{ J}\cdot\text{s}$, $\lambda_p = 514.5 \text{ nm}$; $\tau_1 = 5.5 \text{ ns}$; $R_i = 0.94$; $L = 0.02 \text{ cm}$ 。

3.1. $\delta\lambda = 0$ 的条件

由(27)式可知, 为使 $\delta\lambda = 0$, 则应使系数 $C_3 = 0$, 由(19)和(25)两式很容易知道系数 C_3 可改写为

$$C_3 = \frac{\ln^2 R}{I_p} \cdot \frac{dI_l}{d\lambda} \Big|_{T=1} \quad (28)$$

显然, 当 $\frac{dI_l}{d\lambda} \Big|_{T=1} = 0$ 时, $\delta\lambda = \lambda_m - \lambda_0 = 0$, 这正是在激光器中无腔内波长选择元件时的自由运转条件, 即增益最大处的波长移动为零。然而, 对特定的激光器系统, 它仅适用于某一特定的波长, 而在染料激光器的整个波长调谐范围内不能使 $\delta\lambda$ 均为零, 而只能通过适当的途径减小 $\delta\lambda$, 以满足实际要求。

3.2. 影响 $\delta\lambda$ 的主要因素

影响 $\delta\lambda$ 的因素除了染料介质的特性参数之外, 还有连续波环形染料激光器的谐振腔参数和泵浦特性参数。从光谱学的角度说, 染料激光器的输出波长是增益系数 $G(\lambda)$ 与 $T(\lambda)$ 的卷积结果。

3.2.1 I_p 的影响

$\delta\lambda$ 随着 I_p 的增加而逐渐减小, 这是因为染料激光器的激活介质是均匀加宽的, 增益随着泵浦功率的增加而展宽, 使增益的波长变化率变小, $G(\lambda)$ 和 $T(\lambda)$ 的卷积主要地由 T 决定, 换

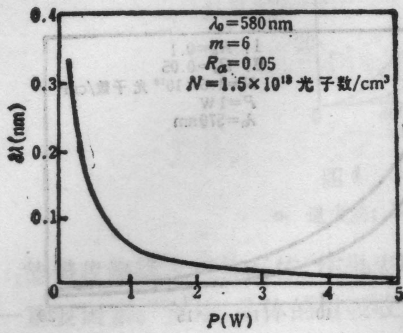


图2 $\delta\lambda-I_p$ 关系曲线

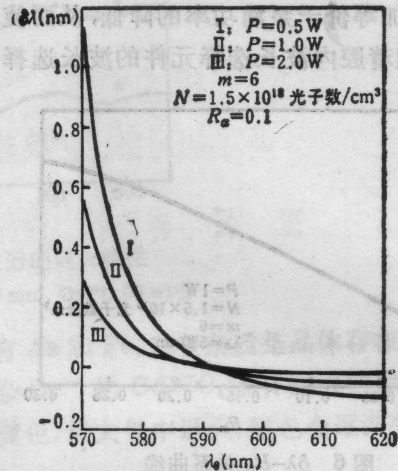


图3 $\delta\lambda$ 在不同的 P 下与 λ_0 的关系曲线

言之, λ_m 主要地由腔内波长选择元件决定, 因而 $\delta\lambda$ 将变小, 图 2、3 给出了计算结果曲线。

3.2.2 N 的影响

在波长调谐范围的短波长上, 随着 N 的增加, $\delta\lambda$ 将逐渐增大; 而在长波长上, $\delta\lambda$ 将逐渐减小, 这是因为随着染料浓度的增加, 自由运转的中心波长将向长波长方向移动, 整个增益曲线也相应地向长波长方向移动。这就造成了 $G(\lambda)$ 在长波长上的变化率变小, 而在短波长上的变化率增大, 故 $G(\lambda)$ 和 $T(\lambda)$ 的卷积结果使 $\delta\lambda$ 有两种不同的变化规律。计算结果见图 4。

3.2.3 谐振腔结构的影响

主要地考虑腔内波长选择元件的影响, 显然, 随着腔内波长选择元件对波长选择性的增强, $\delta\lambda$ 将会变小, 对采用双折射滤光片作为腔内波长选择元件而言, 它的自由光谱范围越小, $\delta\lambda$ 也越小, 但因此就会大大地限制大范围的波长调谐。为了解决这一问题, 常采用多片组合式的双折射滤光片, 最薄的一片确保大范围的波长调谐, 而最厚的那片用于抑制波长的移动。

按照 Beer 的吸收定律, 多片组合式双折射滤光片必然在谐振腔内引入较大的吸收损耗。

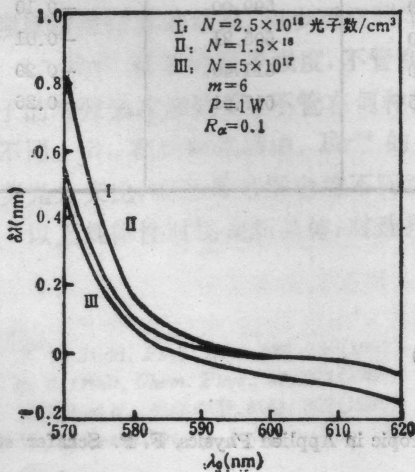


图4 不同 N 下 $\delta\lambda$ 与 λ_0 的关系曲线

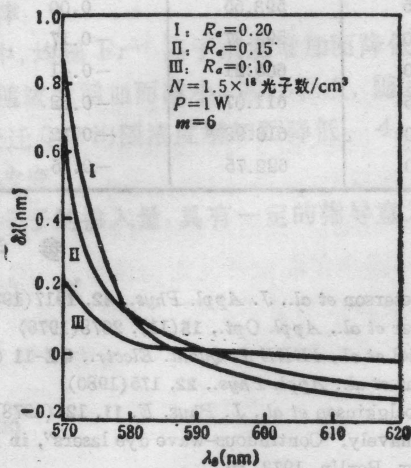


图5 不同损耗下 $\delta\lambda$ 与 λ_0 的关系曲线

损耗的增加等价于泵浦功率的降低,从而使 $\delta\lambda$ 变大。综合以上两方面的考虑,即使引入大的损耗,但随着腔内波长选择元件的波长选择性增强会使波长移动减小。计算结果见图5~图7。

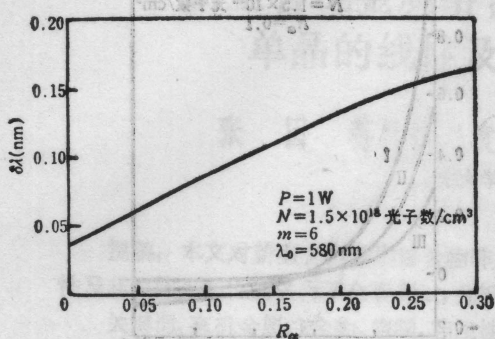


图6 $\delta\lambda-R_0$ 关系曲线

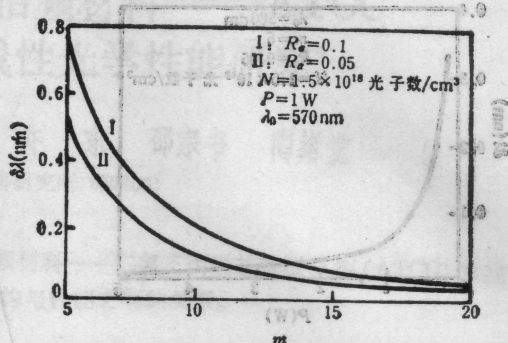


图7 $\delta\lambda$ 与波长选择元件的波长选择性关系曲线

我们采用801A型连续波环形染料激光器对其输出波长的移动进行了测量。

腔内波长选择元件分别为单片(厚0.4mm)和双片(厚分别为0.4mm和1.6mm)双折射滤光片,双折射滤光片的透射峰值波长 λ_0 采用文献[8]给出的计算公式计算。计算 λ_0 所用的起点波长为激光器的自由运转波长,然后通过不同的晶体内光线与晶轴间的夹角得出相应的 λ_0 值。测量结果示于表1。结果表明,采用双片双折射滤光片能够比较有效地抑制波长移动,并且 $\delta\lambda$ 随 λ_0 远离自由运转的中心波长而逐渐增大。这些结果同理论分析是一致的,双片与单片情形下自由运转的中心波长不同是由腔内损耗不同造成的。

表1 $\delta\lambda$ 的测量结果

单片			双片		
λ_m (nm)	λ_0 (nm)	$\delta\lambda=\lambda_m-\lambda_0$	λ_m (nm)	λ_0 (nm)	$\delta\lambda=\lambda_m-\lambda_0$
573.55	570.95	2.60	575.40	574.80	0.60
577.70	576.46	1.24	581.30	580.73	0.57
582.95	582.08	0.87	586.90	586.75	0.15
588.15	587.78	0.37	592.85	592.85	0.00
593.85	593.55	0.00	598.90	599.00	-0.10
599.20	599.37	-0.17	605.20	605.21	-0.01
604.80	605.21	-0.41	611.20	611.40	-0.20
610.45	611.07	-0.62	617.35	617.61	-0.26
616.20	616.92	-0.72			
621.90	622.75	-0.85			

参 考 文 献

- O. G. Peterson *et al.*, *J. Appl. Phys.*, **42**, 1917(1971)
- L. Singer *et al.*, *Appl. Opt.*, **15**(11), 2678(1976)
- U. Ganiel *et al.*, *IEEE J. Quant. Electr.*, **QE-11** (8), 881(1975)
- M. Munz *et al.*, *Appl. Phys.*, **22**, 175(1980)
- I. J. Hoelgkinson *et al.*, *J. Phys. E*, **11**, 121(1978)
- B. B. Shavely, "Continuous-wave dye lasers", in *Day Lasers; Topic in Applied Physics*, F. P. Schäfer *et al.*, Springer, Berlin, 1973, 89
- P. R. Hammond, *IEEE J. Quant. Electr.*, **QE-15**(7), 624(1979)
- I. J. Hodgkinson *et al.*, *Appl. Opt.*, **7** (12), 1944(1978)