

用四波混频产生高效率衍射 极限输出的染料激光

范俊颖 吴存恺 王志英
(中国科学院上海光学精密机械研究所)

提 要

本文提出采用共振增强四波混频的相反传播的泵浦光束泵浦若丹明 6G 酒精溶液, 获得高效率衍射极限输出激光束的方法。使用 KDP 晶体调 Q Nd:YAG 振荡器和 Nd:玻璃放大器激光系统, 经 KDP 晶体倍频的 5320 埃激光作为泵浦光。浓度为 5×10^{-5} 克分子的若丹明 6G 酒精溶液作为染料激光器的激活介质, 它同时作为四波混频的非线性介质。当泵浦功率密度为 5×10^6 瓦/厘米² 时, 得到转换效率达 50% 以上, 光束发散角为衍射极限。本文对这种新型染料激光器的高质量输出特性作了理论分析。

一、引 言

可调谐窄谱宽染料激光器在非线性和激光光谱学及其它科学研究中具有重要作用。在这些实际应用中都需要具有窄线宽和高功率的光束。特别是在同位素分离, 原子和分子的双光子和三光子激发, 相干瞬态光谱学及气体介质的三次谐波和混频研究^[1~3]中, 都需要可连续调谐、窄谱线宽度和高功率的激发源。在过去使用的染料激光器多级放大系统中, 振荡器的效率约为 0.8%^[4]。为了得到高质量激光输出和压缩谱宽, 振荡器和放大器具有较复杂的结构。在这些激光器中, 泵浦波被聚焦或扩束后, 以行波方式通过激活介质, 泵浦染料分子到达高能态, 激活分子经历一个与普通固体激光器同样的受激发射过程。因而输出激光束无疑要受到介质和腔内光学元件非均匀性和光学畸变的影响。到目前为止, 无论 N₂ 分子, 准分子或 Nd:YAG 激光泵浦的染料激光振荡器在不插入任何改善激光束方向性的元件时光束发散角都为几个毫弧度以上。这样差的方向性会导致激光器在使用光栅调谐或腔内插入 F-P 标准具等元件时, 输出强度大幅度下降^[4], 因而人们希望作出改进, 使染料激光振荡器在多频输出时仍具有尽量高的效率和良好的方向性。

激光束泵浦源与传统的氙灯泵浦源具有原则的不同, 由于它具有高的强度, 因而与介质的耦合可能产生非线性效应; 此外, 由于单色性可以与介质产生共振作用, 例如“共振吸收”, 从而使介质的非线性极化率得到共振增强; 良好的方向性可用强聚焦或扩束方法来实现所需要的泵浦方式, 从而可以根据情况选用合适的泵浦场与介质之间的耦合图象。

基于以上想法, 我们提出用四波混频中相反传播的泵浦光束来泵浦染料激光器介质的方案。染料溶液既是激光的介质又是四波混频的非线性介质。由于这是一种非简并的四光

子参量过程, 因此, 在满足相位匹配条件时就可以得到具有相位复共轭自补偿特性的光束。此外, 由于泵浦波的最大利用, 因而会使效率大幅度提高。我们得到了与泵浦波方向性可以比拟的衍射极限的染料激光振荡器输出, 在泵浦功率密度为 5 兆瓦/厘米²时得到泵浦波转换为染料激光振荡器输出波的能量转换效率为 50% 以上。

我们根据共振吸收介质的四波混频作用的理论, 分析了这种新型染料激光器的高质量输出特性。

二、实验及结果

使用 KDP 晶体调 Q Nd:YAG 激光振荡器和钹玻璃放大器激光系统, 其输出 1.06 微米激光经 KDP 晶体倍频得到 5320 埃激光能量可达 100 毫焦耳以上, 脉冲半径最大全宽度标称值为 7 毫微秒, 光束发散角 < 0.5 毫弧度, 采用克分子浓度约为 5×10^{-5} 克分子的若丹明 6G 酒精溶液作为介质。实验装置如图 1 所示。介质盒长为 30 毫米, 反射镜 1 距介质盒后端面约 5 毫米, 光学楔板 3 距介质盒前端面约 100 毫米, 组成 F-P 谐振腔。5320 埃泵浦激光束 A_1 经透镜 4 聚焦在介质盒后端面附近, 盒内光腰半径约为 1 毫米。调整宽带全反射镜 1 和输出板 3, 就可以在与泵浦波成一角度为 $\theta \sim 0.02$ 弧度的方向上观察到一束强的黄光输出。此黄光由透镜 5 复原为平面波。移去全反射镜 9 由精密能量计 12 和 AC15/3 直流复射式检流计显示记录其强度, 同时由精密能量计 11 接收记录泵浦绿光强度(精密能量计灵敏度为 0.15 毫焦耳/毫米)。当泵浦波单脉冲能量在 0.02 毫焦耳到 10 毫焦耳改变时, 测量输出黄光强度, 得到泵浦光强度 I_p 与输出信号光强度 I_s 的变化关系曲线, 如图 2 所示。由该曲线可以看出, 在泵浦强度约为 5 兆瓦/厘米², 转换效率达 50% 以上。泵浦功率继续提高到 30 兆瓦/厘米², 效率开始下降, 这是由于粒子数饱和以及高功率下脉冲的自感应透明造成的。振荡信号具有阈值功率, 当泵浦能量小于 0.01 毫焦耳时, 观察不到黄光输出。为了在强泵浦下仍然得到高的转换效率, 可以采用更高浓度的染料介质或增加介质长度, 也就是增大有效激活体积。

我们记录了泵浦光和信号光的近场分布和远场图。在图 1 中的透镜 6 的焦平面附近(即 13 处)记录黄光的远场图(如图 3c)。移去透镜 6, 记录黄光的近场分布图(如图 3a 及 3a'), 3a' 是在黄光强度较低时拍摄的, 而 3a 对应于较高的黄光强度。由 3a' 我们能够清楚

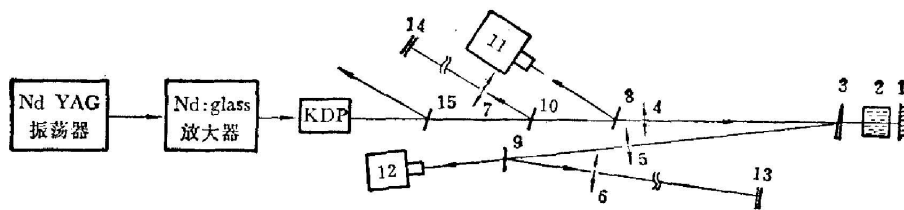


图 1

1—4500 埃到 6500 埃宽带 0° 入射平面全反射镜; 2—介质盒; 3—光学楔板; 4—平凸透镜($f=1.2$ 米); 5、6、7—平凸透镜($f=1.5$ 米); 8—分束器, 对 5320 埃反射率为 28%, 透过 72%; 9—4500 埃到 6500 埃宽带平面全反射镜; 10—分束器; 11、12—LCA 高灵敏激光精密能量计; 13、14—21° 全色感光胶片; 15—1.06 微米全反射镜

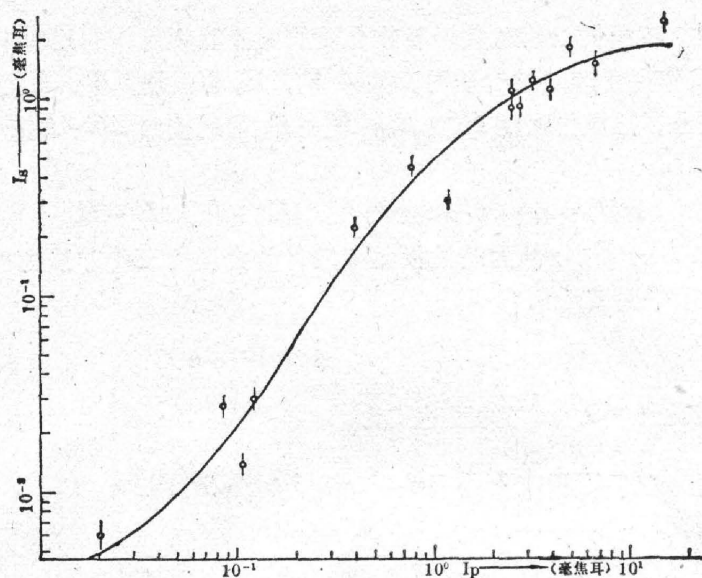


图2 泵浦光强度与信号光强度关系曲线

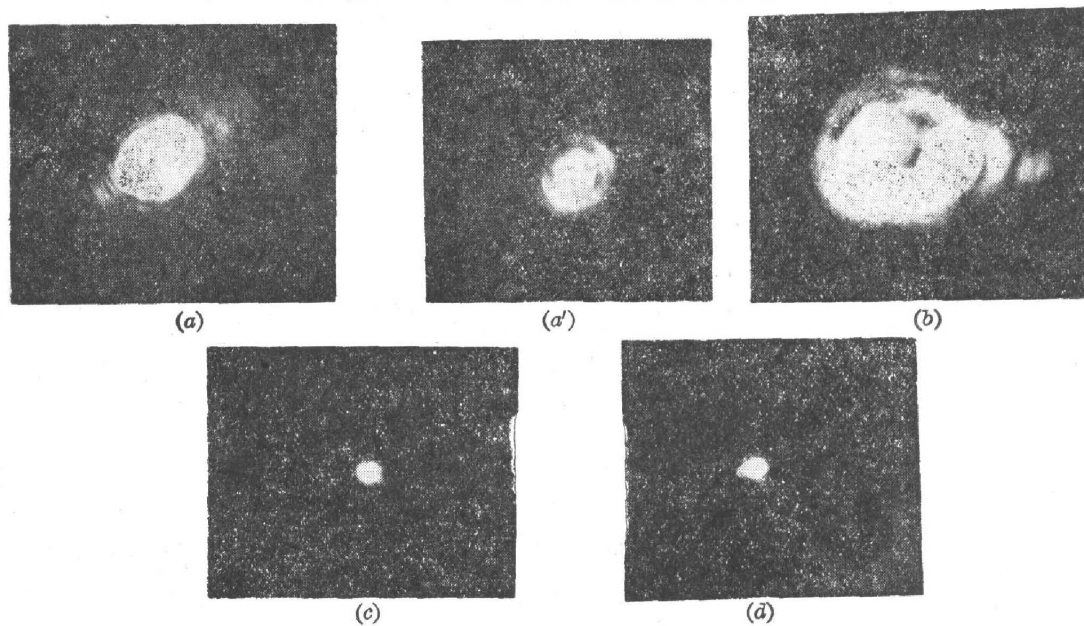


图 3

(a, a')—黄光近场图; (b)—绿光近场图; (c)—黄光远场面; (d)—绿光远场面

地看出黄光近场结构。它具有优良分布特性。在 14 处记录绿光的远场图, 如图 3d 所示。移去透镜 7 记录绿光的近场, 如图 3b 所示。比较图 3c, 3d 可以看出黄光与绿光具有可以比拟的方向性。由图 3a, 3b 看出黄光的近场分布比绿光的近场分布具有更好的均匀性和对称性。

三、分析及讨论

若丹明 6G 酒精溶液在 5320 埃附近有一强的吸收峰, 因而, 用 5320 埃激光作泵浦源就

具有共振吸收特性。在我们以前对共振吸收介质的四波混频所作的处理中^[5]指出, 当有 $\mathbf{E}_1, \mathbf{E}_2, \mathbf{E}_3, \mathbf{E}_4$ 四个波作用于非线性介质时, 如果 $\mathbf{E}_1, \mathbf{E}_2$ 为强场, $\mathbf{E}_3, \mathbf{E}_4$ 为弱场, 则由 $\mathbf{P} = \varepsilon_0 \chi(\mathbf{E}) \cdot \mathbf{E}$ 基本关系, 把极化强度 \mathbf{P} 在 $\mathbf{E}_0 = \mathbf{E}_1 + \mathbf{E}_2$ 附近按照 $\Delta \mathbf{E} = \mathbf{E}_3 + \mathbf{E}_4$ 展开到一级近似得

$$\mathbf{P}(t) = \varepsilon_0 \chi^{(1)} \mathbf{E} + \varepsilon_0 \chi^{(3)} (\mathbf{E}_0 \cdot \Delta \mathbf{E}^* + \mathbf{E}_0^* \cdot \Delta \mathbf{E}) \cdot \mathbf{E}, \quad (1)$$

式中 $\mathbf{E} = \mathbf{E}_1 + \mathbf{E}_2 + \mathbf{E}_3 + \mathbf{E}_4$, $\chi^{(1)}$ 为线性极化率, $\chi^{(3)}$ 为介质的三阶非线性极化率。对光电场 $\mathbf{E}_i (i=1, 2, 3, 4)$ 取平面波近似有

$$\mathbf{E}_i(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{2} A_i(\mathbf{r}) \cdot e^{i(\omega_i t - \mathbf{k} \cdot \mathbf{r})} + C.C. \quad (2)$$

于是得到非线性极化强度 $\mathbf{P}^{NL}(t)$ 的表达式为

$$\begin{aligned} \mathbf{P}^{NL}(t) = & \dots + \frac{3}{2} \chi^{(3)}(-\omega_4; -\omega_1, \omega_2, \omega_3) A_1^* A_2 A_3 \\ & \times e^{-i(-\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 + \mathbf{k}_3) \cdot \mathbf{r}} \times e^{i(\omega_1 - \omega_2 + \omega_3)t} + C.C. \\ & + \frac{3}{2} \chi^{(3)}(-\omega_4; \omega_1, -\omega_2, \omega_3) A_1 A_2^* A_3 \\ & \times e^{-i(\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2 + \mathbf{k}_3) \cdot \mathbf{r}} \times e^{i(\omega_1 - \omega_2 + \omega_3)t} + C.C. \\ & + \frac{3}{2} \chi^{(3)}(-\omega_3; \omega_1, -\omega_2, \omega_4) A_1 A_2^* A_4 \\ & \times e^{-i(\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2 + \mathbf{k}_4) \cdot \mathbf{r}} \times e^{i(\omega_1 - \omega_2 + \omega_4)t} + C.C. \\ & + \frac{3}{2} \chi^{(3)}(-\omega_3; -\omega_1, \omega_2, \omega_4) A_1^* A_2 A_4 \times e^{-i(-\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 + \mathbf{k}_4) \cdot \mathbf{r}} \\ & \times e^{i(-\omega_1 + \omega_2 + \omega_4)t} + C.C. + \dots \end{aligned} \quad (3)$$

在上述的实验条件下, 我们看到, 没有物波输入。但是, 我们知道, 若丹明 6G 酒精溶液在 5320 埃激光泵浦下具有宽带的荧光发射, 此自发发射经反馈就成为输入的第三个波, 即四波混频中的物波, 这时, 当满足参量过程的相位匹配条件时将产生第四个波, 形成四光子参量过程。

在我们的实验条件下有 $\omega_1 = \omega_2 = \omega_g$; $\omega_3 = \omega_4 = \omega_y$ (ω_g, ω_y 分别为泵浦绿光和信号黄光的角频率)。由 (3) 式可以看出, 其中的第二、四项可以满足相位匹配条件 $|\Delta \mathbf{k} \cdot \mathbf{r}| \ll \pi$, 其中

$$\Delta \mathbf{k} = \mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 + \mathbf{k}_3 + \mathbf{k}_4 \quad (4)$$

和

$$\omega_1 - \omega_2 + \omega_3 = \omega_4, \quad (5)$$

式 (4) 与式 (5) 为四光子参量过程的动量守恒和能量守恒条件。式 (3) 的第二项发射一个频率为 ω_4 , 波矢为 \mathbf{k}_4 的波 \mathbf{E}_4 , 并且有

$$A_4 \propto A_2^*. \quad (6)$$

同样, 式 (3) 中的第四项发射一个频率为 ω_3 , 波矢为 \mathbf{k}_3 的波 \mathbf{E}_3 , 并且有

$$A_3 \propto A_1^*. \quad (7)$$

对于平面波泵浦有 $A_1 \propto A_2^*$, 故由式 (6) 和 (7) 得到 $A_3 \propto A_4^*$, 于是 A_3 波的相位畸变可以由 A_4 波得到补偿, 而 A_4 波的相位畸变可以由 A_3 波得到补偿。因此, 在谐振腔中, 由于这种相位自补偿作用使输出光束具有与原始泵浦光束同样良好的方向性, 故可达到衍射极限。

此外, 这种四光子参量过程的相位匹配条件可以对发射波的频率产生选择, 起选频作

用,因而可以产生压缩谱宽作用。另一方面,在这种四波混频中,两束近相反传播的泵浦波在非线性介质中相干涉,由于介质是近共振吸收的,因而这种干涉条纹在介质中形成体相位光栅^[6],发射的荧光辐射要经受该体光栅造成的布喇格衍射,从而对染料激光发射波长进行选择。事实上,在我们的实验中输出的黄光光斑没有通常染料激光器(用若丹明 6G 酒精溶液作介质的)输出黄光光斑周围的橙色激光。关于这种类似于分布反馈作用的谱线压缩的研究目前正在进行中。

过去,人们为了获得波面良好的激光输出,提出过自适应光学谐振腔^[7],但结构是比较复杂的。我们提出,对于激光泵浦的染料激光器可以同时把激光介质作为非线性混频介质。由于泵浦波场与激活介质的耦合,可以形成共振和近共振吸收作用,因此,非线性极化率可以得到共振增强。从而这种振荡器可以作到结构简单,容易实现高效率,并能得到高质量的激光输出。

参加本工作的还有中国科技大学 1980 年毕业生宋建军。作者对范琦康、毛伟民、柳月英的有益讨论和热情支持表示感谢。

参 考 文 献

- [1] S. A. Lee, R. Wallenstein *et al.*; *Phys. Rev. Lett.*, 1975, **35**, No. 19 (10 Nov), 1262.
- [2] R. Teets, J. Eckstein *et al.*; *Phys. Rev. Lett.*, 1977, **38**, No. 14 (4 Apr), 760.
- [3] J. J. Wynne, P. P. Sorokin; *Topics in Applied Physics*, Vol. 16, ed. Y. R. Shen (Springer Verlag, Berlin 1977), 159~214.
R. Wallenstein; Pulsed dye laser, *Laser Handbook* Vol. 3, ed. M. L. Stich (North-Holland Publishing Company, Amsterdam).
- [4] R. Wallenstein, H. Zacharias; *Opt. Commun.*, 1980, No. 1 (Jan), 3.
- [5] 范俊颖, 吴存恺, 王志英, 《物理学报》1980, **29**, No. 7 (Jul), 897.
- [6] 吴存恺, 范俊颖; 《激光》, (待发表)。
- [7] R. H. Freeman, R. J. Freiberg *et al.*; *Opt. Lett.*, 1978, **2**, No. 3 (Mar), 61.

High efficiency and diffraction-limited dye laser beam generated by four-wave mixing

FAN JUNYIN, WU CUNKAI and WANG ZHIYING

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

(Received 12 September 1980)

Abstract

In this paper a way of generating high efficiency and diffraction-limited dye laser beam is proposed. In this dye laser, Rhodamine 6G solution in alcohol is pumped by counterpropagating pumping beams in four-wave mixing. The 5320Å laser radiation from second harmonic of the output of a Nd:laser system consisting of a Q-switched Nd:YAG oscillator and Nd:glass amplifiers is used as the pumping source. The Rhodamine 6G solution is used as both the active medium of the dye laser and the nonlinear medium for four-wave mixing. The concentration of the Rhodamine 6G solution in alcohol is about 5×10^{-5} mole. Using pumping intensity of about 5×10^6 W/cm², the energy conversion efficiency of the pumping beam to dye laser beam is about 50%, and the beam divergence of the laser output is near diffraction-limited. The good quality of the output beam of the new type dye laser is analysed theoretically.