

关于腔内光谱机理和灵敏度的分析

潘 少 华

(中国科学院物理研究所)

1981年1月21日收到

提 要

本文用激光器模式耦合半经典理论,阐述激光腔内吸收光谱学方法的物理机制,探求影响灵敏度的因素.

一、引 言

激光腔内吸收光谱学方法是把待研究的介质插入宽带多模激光腔内,而此介质待测的弱吸收线位于激光器增益谱带内.此方法的灵敏度比腔外单程吸收方法约可高 10^5 倍^[1].

Brunner 和 Paul 从激光器的一种数学模型和相应的速率方程出发,给出激光腔内吸收光谱学理论,推导出腔内吸收方法的灵敏度关系^[2,3].这种模型的基础在于:假设激光器内存在许多“单一容器”,由其中第 i 个容器发射光子给第 i 模激光场;同时又有一个“共同容器”发射光子给各模激光场.并且认为每个单一容器的抽运率 R_i 与共同容器的抽运率 R_0 的比值 ν 是一个基本参量.本文的研究工作表明,由激光器模式耦合半经典理论,可直接导出他们的灵敏度关系等结果,既不需要上述关于“单一容器”和“共同容器”的附加假设,又能赋予 ν 以真实的物理含义,从而可以更加深入地分析和探求决定腔内吸收方法灵敏度的各种物理因素.

二、灵敏度公式

根据激光器模式耦合半经典理论^[4,5]可以写出模 i 光子数 n_i 的运动方程如下:

$$\frac{dn_i}{dt} = n_i \left(\alpha_i - \gamma_i - B_i n_i - \sum_k' C_{ik} n_k \right). \quad (1)$$

上式 $\sum_k'$ 表示求和时不包括 $C_{ii}n_i$, α_i 是线性增益系数, γ_i 是衰减系数, B_i 及 C_{ik} 分别为自饱和系数及交叉饱和系数.对于腔内吸收方法经常使用的染料激光器来说,这些系数表示如下^[6]:

$$\alpha_i = \pi \nu_i (\epsilon \hbar)^{-1} \bar{N}_1 g(\nu_i) |\mu(\nu_i)|^2, \quad (2)$$

$$\gamma_i = \nu_i / Q_i, \quad (3)$$

$$B_j = \left(1 + \frac{1}{2} \eta\right) (\gamma_1 V)^{-1} \bar{N}_1 \left\{ \frac{\pi \nu_j}{\hbar \varepsilon} g(\nu_j) |\mu(\nu_j)|^2 \right\}^2, \quad (4)$$

$$C_{jk} = \left[1 + \frac{1}{2} \eta N_{2(k-j)} / \bar{N}_1\right] (\gamma_1 V)^{-1} \bar{N}_1 \left(\frac{\pi}{\hbar \varepsilon}\right)^2 \nu_j \nu_k g(\nu_j) g(\nu_k) |\mu(\nu_j)|^2 |\mu(\nu_k)|^2 \\ \times \left\{1 + L_1(\nu_k - \nu_j) \left[1 + \frac{1}{\pi \gamma_1} (\nu_k - \nu_j) \ln \left| \frac{\omega_1 - \nu_j}{\omega_2 - \nu_j} \right| \right]\right\}, \quad (5)$$

式中 ν_j 是圆频率, $\hbar$ 是普朗克常数除以 2π , $\bar{N}_1$ 是染料激光上能级粒子数 $N(z, t)$ 沿腔长 L 的平均值, ε 是染料溶媒的介电常数, $g(\nu_j)$ 是激光下能级簇的能级密度 dn/dE 乘以 $\hbar$, $\mu(\nu_j)$ 是电偶极矩矩阵元, Q_j 是品质因子. η 对单向行波运转等于零, 对驻波运转等于 1. γ_1 是上能级衰减率, ω_2, ω_1 分别对应于上能级与下能级簇的能级差除以 $\hbar$ 的上、下限, V 是模体积,

$$N_{2(k-j)} = \frac{1}{L} \int_0^L dz N_1(z, t) \cos[(2(k-j)\pi/L)z],$$

$$L_1(\nu_k - \nu_j) = \gamma_1^2 [(\nu_k - \nu_j)^2 + \gamma_1^2]^{-1}.$$

对于象染料激光器那样的宽带多模激光器, α_j 和 B_j 是 ν_j 的缓变函数. 若忽略与洛伦兹函数 $L_1(\nu_k - \nu_j)$ 有关的这一项的贡献^[5], 则 C_{jk} 也是 ν_j 和 ν_k 的缓变函数. γ_j 由激光器内损耗机制来定, 对于激光器宽带之内的模它也可以被认为是个缓变函数. 因此下面为了探求影响腔内吸收方法灵敏度的主要因素, 为简单起见, 假设 α_j , B_j 和 C_{jk} 与下标无关, 略去下标, 并把交叉饱和系数与自饱和系数的比值记为 p ,

$$p = C/B. \quad (6)$$

于是(1)式简化成为

$$\frac{dn_i}{dt} = n_i [\alpha - \gamma_i - B n_i - p B (N - n_i)],$$

式中 $N = \sum_k n_k$ 是总光子数. 激光器处于稳态振荡时, 即增益饱和平衡时, $dn_i/dt = 0$,

$$\alpha - \gamma_i - B n_i - p B (N - n_i) = 0 \quad (7)$$

或

$$n_i = \frac{1}{B(1-p)} (\alpha - \gamma_i - p B N). \quad (8)$$

设共有 M 个模起振, 对所有模 ($j = 1, 2, \dots, M$) 将(8)式求和, 求得总光子数

$$N = \frac{M\alpha - \sum_i \gamma_i}{B[1 + (M-1)p]}.$$

将上式代入(8)式得增益饱和平衡时的模 i 光子数

$$n_i = \frac{1}{B(1-p)} \left[\alpha - \gamma_i - \frac{pM}{1 + (M-1)p} (\alpha - \gamma) \right]. \quad (9)$$

上式已将 $\sum_i \gamma_i$ 记为 $M\gamma$.

假设在插入待研究介质前,模 i 光子的衰减系数为 γ , 插入待研究介质后,由于此介质的弱吸收线位于激光器增益谱宽带内,仅使某个模,例如模 i 的损耗系数发生改变,增加至 $\gamma + d\gamma$, 在输出功率稳定即总光子数 N 不变的条件下,设模 i 的光子数由原先的 n 减少至 $(n - dn)$, 于是由(9)式可以求出以下二式:

$$n = \frac{\alpha - \gamma}{B[1 + (M - 1)p]}, \quad (10)$$

$$n - dn = \frac{\alpha - \gamma}{B[1 + (M - 1)p]} - \frac{\alpha\gamma}{B(1 - p)}. \quad (11)$$

定义腔内吸收方法灵敏度为

$$\beta = dn/n. \quad (12)$$

将(10)和(11)式代入上式得

$$\beta = d\gamma \frac{1 + (M - 1)p}{(\alpha - \gamma)(1 - p)}. \quad (13)$$

从上式可见, β 与通常的腔外吸收方法灵敏度 $\beta_e (= d\gamma)$ 的比值为

$$\frac{\beta}{\beta_e} = \frac{1 + (M - 1)p}{(\alpha - \gamma)(1 - p)}. \quad (14)$$

如果将以上理论中的 p 值,与引言中提到的文献[2]的参量 ν 作如下形式上的联系:

$$1/p = 1 + \nu = (R_0 + R_s)/R_0$$

将此关系代入(14)式,则得到与文献[2]中第(20)式相同的表达式.两者的上述联系说明,文献[2]的模型中假设的“共同容器”可对应于激光器半经典理论中的交叉饱和系数,而“共同容器”加“单一容器”则对应于自饱和系数.本节以及第四节第3段的进一步推广,用激光器半经典理论,不需要附加假设,直接导出了文献[2, 3]的腔内吸收光谱学理论模型,并因此赋予它真实的物理含义.

三、灵敏度关系的物理分析

以上从激光器模式耦合理论所推导的腔内吸收方法灵敏度关系表明,腔内吸收方法与通常的腔外吸收方法有着显然不同的物理机制,后者相当于一个衰减片的作用,而前者却来自增益饱和的动态平衡.(13)式表明,从这种物理机制而来的腔内光谱灵敏度由三个因素决定,即反比于 $(\alpha - \gamma)$ 和 $(1 - p)$, 正比于 $[1 + (M - 1)p]$, 它们可分析于下:

(1) 假想交叉饱和系数 $C = 0$, 各模之间不存在模式耦合和竞争,彼此独立地振荡. 让(10)式中 $p = 0$, 得独立模的增益饱和光子数

$$n = (\alpha - \gamma)/B. \quad (10)'$$

将上式用于定义式(12),可见由于增益饱和平衡时的光子数与 $(\alpha - \gamma)$ 成正比,使得 β 与 $(\alpha - \gamma)$ 成反比,因此当激光器处于近阈值运转,即 $\alpha \approx \gamma$ 时灵敏度较高.

(2) 当 $p \neq 0$, 各模之间通过交叉饱和效应,发生互相耦合和竞争. 对比(10)与(10)'式可见,由于其余 $(M - 1)$ 个模的存在和 $p \neq 0$, 使得增益饱和平衡时的模 i 光子数

n 比 $p = 0$ 时的(10)'式值小 $[1 + (M - 1)p]$ 倍, 因而 β 与 $[1 + (M - 1)p]$ 成正比. 特别当 $Mp \gg 1$ 时, β 与 M 成正比.

(3) 从(7)式可得, 在总光子数 N 不变的条件下, 插入吸收介质前后的增益饱和平衡条件分别为

$$\alpha - \gamma - Bn - pB(N - n) = 0$$

和

$$\alpha - (\gamma + d\gamma) - B(n - dn) - pB[N - (n - dn)] = 0.$$

二式相减得

$$dn = d\gamma/B(1 - p). \quad (15)$$

它表明由于当自饱和作用减小 Bdn 值的同时, 交叉饱和作用将反而增加 $pBdn$, 抵消一部分自饱和作用的减小, 因此要达到新的增益饱和平衡所需要的模 i 光子数减少量 dn , 将比独立模的相应量 $d\gamma/B$ 大 $(1 - p)^{-1}$ 倍. 因此 β 将与 $(1 - p)$ 成反比. 特别当 $p \approx 1$ 时, β 急剧增加, 表明在这种情况下, 吸收模损耗系数比其余模的任何一点超过, 都会由于上述模式竞争效应使模 i 的光子数降为零, 或者更确切地说, 将降至自发发射光子数的水平. 例如对于染料激光器, 从(4)和(5)式可以算出, 驻波运转时 $p \approx 2/3$, 单向行波运转时 $p = 1$, 所以用后者腔内吸收方法灵敏度高于前者.

四、讨 论

1. 根据上节的分析可以得出结论: 腔内光谱方法所要求的激光器, 是宽带多模的, 因此没有压缩线宽的要求; 由于近阈值运转, 因此对激光器功率的要求不高. 这两点从技术上看都是有利的. 例如一般的染料激光器可作为这方面的理想器件, 已广泛用于多种目的的腔内光谱测量, 参见文献[6]的引文.

2. 本文为了分析腔内光谱方法的物理机制和探求决定灵敏度的主要因素, 对增益饱和等系数作了些简化假设. 更定量的分析应当将具体参数代入有关方程, 例如染料激光器的(1)~(5)式, 作数值计算来求出. 通过计算还应当表明, 由于时间效应、腔模的宽度和间隔, 以及如同(5)式中洛伦兹函数等因素的影响, 腔内方法所测定的待研究介质吸收线的形状, 将与真实的线型可能有差异. 关于腔内光谱测量对线型的影响, 最近已有实验推导^[7,8], 并给出一定的理论处理^[9].

3. 本文只对在应用上有重要意义的近阈值运转作了较详细的推导和分析. 至于远在阈值之上的运转情况, (1)式非线性方程应加进更高阶的项, 即让有效增益系数成为

$$\alpha'_i = \alpha_i - B_i n_i - \sum_k C_{ik} n_k + (n_i, n_k \text{ 高阶项}). \quad (16)$$

例如对染料激光器, 在速率方程近似下, 由文献[5]可算得

$$\alpha'_i = \alpha_i \frac{1}{L} \int_0^L \frac{f_i(z)}{1 + \sum_{\sigma} Q_{\sigma} f_{\sigma}(z)} dz, \quad (17)$$

$$Q_{\sigma} = \pi(\hbar \varepsilon \gamma_1 V)^{-1} \nu_{\sigma} g(\nu_{\sigma}) |M(\nu_{\sigma})|^2 n_{\sigma}, \quad (18)$$

$$f_{\sigma}(z) = 1 - \eta \cos(2\pi m_{\sigma} z / L). \quad (19)$$

m_{σ} 与 ν_{σ} 的关系为 $\nu_{\sigma} = m_{\sigma} \pi v / L$, v 是光速. 按下式定义推广的自饱和系数 $\tilde{B}_j$ 及交叉饱和系数 $\tilde{C}_{jk}$:

$$\tilde{B}_j = -\partial \alpha'_j / \partial n_j, \quad \tilde{C}_{jk} = -\partial \alpha'_j / \partial n_k \quad (k \neq j). \quad (20)$$

作了以上定义之后, 可以将第二节中关于灵敏度关系的推导推广, 例如在假设 α_j , $\tilde{B}_j$ 和 $\tilde{C}_{jk}$ 与下标无关的简化条件下, 定义 $\tilde{p} = \tilde{C} / \tilde{B}$.

将(15)式中的 p 用 $\tilde{p}$ 取代, 就可得到更一般的关系

$$dn = d\tau / \tilde{B}(1 - \tilde{p}). \quad (22)$$

增益平衡光子数由以下方程组求出:

$$\alpha'_j = \gamma_j. \quad (23)$$

将求得的 n 和(22)式代入定义式(12), 可求出一般情况下的灵敏度关系.

激光器半经典理论本身不包含自发辐射项^[5], 后者在通常激光器运转情况下是可以忽略的, 但如果要考虑它的影响, 可将(16)式定义的 α'_j 乘上 $(1 + 1/n_j)$, 并将自饱和系数及交叉饱和系数作相应的进一步推广, 令 $\tilde{B}_j = \partial[\alpha'_j(1 + 1/n_j)] / \partial n_j$, $\tilde{C}_{jk} = \partial[\alpha'_j(1 + 1/n_j)] / \partial n_k$, 就可以在灵敏度关系中唯象地包含自发辐射的作用. 对自发辐射项更深入的理论处理方法可参阅文献[6].

参 考 文 献

- [1] V. S. Letokhov, *Optics Laser Tech.*, **9**(1977), 263.
- [2] W. Brunner and H. Paul, *Optics Comm.*, **12**(1974), 252.
- [3] W. Brunner and H. Paul, *Opt. Quantum Electron.*, **10**(1978), 139.
- [4] M. Sargent III *et al.*, "Laser Physics", (Addison-Wesley, 1974).
- [5] 潘少华, 物理学报, **30**(1981), 1067.
- [6] H. J. Kimble, *IEEE J. Quantum Electron.*, QE-16(1980), 455.
- [7] W. T. Hill III *et al.*, *Optics Comm.*, **32**(1980), 96.
- [8] P. Kumar *et al.*, *Optics Comm.*, **32**(1980), 129.
- [9] G. O. Brink, *Optics Comm.*, **32**(1980), 123.

ANALYSIS OF THE MECHANISM AND SENSITIVITY OF INTRACAVITY SPECTROSCOPY

PAN SHAO-HUA

(Institute of Physics, Academia Sinica)

ABSTRACT

The mechanism of intracavity absorption spectroscopy is described by the semiclassical theory of mode coupling in laser, and an analysis of the factors that determine sensitivity is given.