

О применении трехмодовой генерации широкополосного лазера во внутрирезонаторной дисперсионно-частотной спектроскопии

И.П.Коновалов

Биения трехмодового лазера на красителе, содержащие компоненту с частотой, равной разности соседних межмодовых интервалов, технические флуктуации которых взаимно компенсируются, рассмотрены в перспективе развития метода лазерной спектроскопии с пределом обнаружения порядка $10^{-10} - 10^{-11} \text{ см}^{-1} |\text{Гц}|^{1/2}$, определяемым естественными частотными флуктуациями и спектральным разрешением, ограниченным однородной шириной резонансной линии. Используются неодинаковое изменение двух межмодовых интервалов эквидистантного трехмодового спектра, обусловленное дисперсией линии поглощения внутрирезонаторного поглотителя, и детектирование возникающей разностной частоты.

Ключевые слова: трехмодовая генерация, внутрирезонаторная спектроскопия, межмодовые интервалы.

В спектре оптических биений широкополосного лазера с однородной линией усиления при малой частотной неэквидистантности трех устойчиво генерируемых мод ($\omega_1 - \omega_2 \equiv \omega_{12} \neq \omega_{23} \equiv \omega_2 - \omega_3$) имеет место компонента разностной частоты $\Omega \equiv \omega_{12} - \omega_{23}$ [1]. Коррелированные технические флуктуации межмодовых частотных интервалов, связанные, в частности, с ограниченной жесткостью конструкции резонатора, также дают разностную частоту $\delta\Omega = (\omega_{12} - \omega_{23})(\delta L/L)$, которая полностью обращается в нуль в эквидистантном ($\omega_{12} = \omega_{23}$) трехмодовом режиме. Помимо шумов фотоэлектрического тракта регистрации остаются некоррелированные естественные частотные флуктуации, спектральная плотность которых, по оценкам, не превышает $\sim 0.1 - 1 \text{ Гц}/\text{Гц}^{1/2}$. С верхней границей этой оценки совпадает по порядку величины экспериментальный шум в трехмодовом лазере на красителе [1].

Физические особенности конкуренции и устойчивости мод в лазере на красителе носят общий характер для лазеров с внешним резонатором на целом ряде активных сред с однородной полосой усиления, сверхширокой по сравнению с разумным интервалом $\omega_{12} \sim 1 \text{ ГГц}$: на F -центрах, на кристаллах, активированных ионами переходных металлов, на полупроводниках и т. д. [2]. В спектре биений при слабом нарушении эквидистантности трех мод должна появляться низкочастотная малощумящая компонента. Поскольку это появление может быть вызвано различными причинами, открываются перспективы развития лазерной метрологии частотного детектирования с пределами регистрации, физически ограниченными только естественными флуктуациями оптических частот генерации. В данной работе эти перспективы рассматриваются в аспекте развития внутрирезонаторной дисперсионно-частотной спектроскопии.

В основу исследования было положено линейное от-

талкивание мод оптического резонатора от центра линии внесенного в него резонансного поглотителя, обусловленное ненасыщенной дисперсией и регистрируемое в межмодовых биениях радиочастотного диапазона [3]. Если частота моды превышает центральную частоту ω_0 линии поглощения, то при внесении поглотителя частота моды увеличивается, в противном случае – уменьшается. Изменение частоты биений этих двух мод $\Delta\omega_{12}$ представляет собой пропорциональный плотности резонансных частиц аналитический сигнал. Его независимость от мощности генерируемого поля обеспечена линейностью используемого эффекта. В двухмодовом режиме генерации максимальный частотный фотоотклик достигается при симметричной настройке мод относительно ω_0 и межмодовом интервале, равном доплеровской ширине дисперсии линии поглощающего перехода $2\Delta\nu_D$. Этот фотоотклик имеет чувствительность

$$\left(\frac{\Delta\omega_{12}}{\alpha}\right)_{\max} \approx \frac{cd}{L} = 3 \cdot 10^{10} \frac{d}{L} \text{ Гц}/\text{см}^{-1}, \quad (1)$$

где α – коэффициент поглощения; c – скорость света; L и d – длины резонатора и внутренней поглощающей ячейки. Эта оценка подтверждена экспериментально в струйном лазере на красителе родамин 6Ж с парами Na внутри резонатора [3].

Предельно обнаружимое поглощение α_{\min} определяется минимальной расстройкой $\Delta\omega_{12}$, которую можно экспериментально зарегистрировать. В [4] сообщается о регистрации частоты биений $\omega_{12} \approx 1 \text{ ГГц}$ двухмодового лазера, использованного в экспериментах [3], с неопределенностью $\sim 1 \text{ кГц}$. Одновременно в [4] исследован режим генерации трех эквидистантных мод при том же межмодовом интервале $\omega_{12} = \omega_{23}$. В рамках лэмбовского формализма показано, что этот режим в лазере на красителе следует трактовать как захват трех мод при синфазности биений боковых частот с центральной частотой (ω_1, ω_2 и ω_2, ω_3). Экспериментальная неустойчивость частоты оказалась на порядок меньше ($\sim 100 \text{ Гц}$), чем в двухмодовом режиме. Очевидно, что при симмет-

ричном расположении трех эквидистантных мод на линии поглощения и $\omega_{12} = \omega_{23} = \Delta\nu_D$ сдвиг $\Delta\omega_{12} = \Delta\omega_{23}$ биений вдвое меньше, чем при двухмодовых биениях. Однако бо́льшая стабильность обеспечивает более низкий предел обнаружения α_{\min} , т. е. трехмодовый режим генерации метрологически предпочтительнее двухмодового. Тем не менее в этом случае пределы регистрации (~ 100 Гц) на несколько порядков больше естественных флуктуаций межмодовых биений, физически ограничивающих абсолютный предел обнаружения ($\sim 10^{-10} - 10^{-11}$ см⁻¹/Гц^{1/2}). Несмотря на то что технические флуктуации собственных частот резонатора скоррелированы (каждая мода – почти идеальный оптический гетеродин для другой), флуктуации межмодовых интервалов сохраняются: $\delta\omega_{nm}/\omega_{nm} = \delta L/L$.

Радикально улучшить ситуацию обещает обращение к разностной частотной компоненте Ω , которая должна возникнуть при неодинаковом по модулю изменении частот генерации, если изначально эквидистантный трехмодовый спектр настроить несимметрично по отношению к ω_0 . (Строгости ради отметим, что возникнет и частота 2Ω [2]. Однако по смыслу задачи Ω мало и в реальном опыте прибор усреднит эти компоненты, поэтому для простоты принимаем во внимание только первую гармонику Ω .) В общем случае девиация каждой из генерируемых частот будет суммой линейного и нелинейных дисперсионных эффектов [3]: $\Delta\omega_n = \Delta\omega_n^{(1)} + \Delta\omega_n^{(3)}$. В пределе неоднородного уширения линии поглощения $\Delta\nu_D \gg \gamma$, где γ – однородная полуширина линии, справедливы следующие выражения:

$$\Delta\omega_n^{(1)} = A \frac{2(\omega_n - \omega_0)}{\Delta\nu_D (\ln 2)^{1/2}} \exp \left\{ - \left[\frac{\omega_n - \omega_0}{\Delta\nu_D (\ln 2)^{1/2}} \right]^2 \right\}, \quad (2)$$

$$\Delta\omega_n^{(3)} = -A \sum_{m=1}^3 \frac{2\gamma(\omega_n + \omega_m - 2\omega_0)}{4\gamma^2 + (\omega_n + \omega_m - 2\omega_0)^2} I_m I_0^{-1}.$$

Здесь $A = \alpha c(d/L)$; I_0 – интенсивность насыщения линии поглощения; I_m – интенсивность m -й моды. При $m = n$ слагаемое в сумме $\Delta\omega_n^{(3)}$ описывает насыщение дисперсии моды на частоте ω_n ее собственным полем, а при $m \neq n$ – ее перекрестное насыщение полями двух других мод. Нетрудно видеть, что при симметричной настройке трех эквидистантных частот относительно ω_0 ($\omega_2 = \omega_0$, $\omega_{12} = \omega_{23}$) одинаковое по величине и противоположное по знаку линейное отталкивание боковых мод не приведет к нарушению эквидистантности и появлению компоненты разностной частоты $\Omega^{(1)} = (\Delta\omega_1^{(1)} - \Delta\omega_2^{(1)}) - (\Delta\omega_2^{(1)} - \Delta\omega_3^{(1)})$ ни при каком отношении $\omega_{12}/\Delta\nu_D$. Если при этом $|\omega_2 - \omega_0| \sim \gamma$, то нелинейные поправки для всех мод в приближении равенства их интенсивностей одинаковы и в разностной компоненте вклад $\Omega^{(3)}$ отсутствует.

В другом характерном случае настройки на центр линии поглощения одной из боковых мод, например ω_1 , ее частота не испытывает линейного дисперсионного сдвига: $\Delta\omega_1^{(1)} = 0$. Ненулевые сдвиги двух других мод различны, они и приведут к возникновению разностной линейной компоненты $\Omega^{(1)} \neq 0$. При $\omega_{12} = \omega_{23} \sim \Delta\nu_D$ в зависимости от отношения $\omega_{12}/\Delta\nu_D$ максимальный трехмодовый фотоотклик $\Omega^{(1)}$ может быть как несколько меньше, так и несколько больше, чем двухмодовый. Игнорируя эти спектротметрически несущественные различия, считаем чувствительность по поглощению в обоих режимах генерации одинаковой и заменим в (1) $\Delta\omega_{12}$ на

$\Omega^{(1)}$. Тогда при разумном отношении $d/L = 1/3$ ширина низкочастотной «шумовой дорожки» [1] уже соответствует пределу обнаружения $10^{-9} - 10^{-10}$ см/Гц^{1/2}, а ее уменьшение до квантово-флуктуационной оценки позволяет ожидать снижения предела обнаружения по крайней мере еще на порядок. Спектральное разрешение (селективность анализа) при этом, как и в линейной спектроскопии вообще, будет ограничено доплеровским уширением линии поглощения. При перестройке $|\omega_1 - \omega_0| \gtrsim \gamma$ из (2) имеем

$$\Delta\omega_1^{(3)} = -A \frac{\gamma(\omega_1 - \omega_0)}{\gamma^2 + (\omega_1 - \omega_0)^2} I_1 I_0^{-1}, \quad \Delta\omega_2^{(3)} = \Delta\omega_3^{(3)} = 0, \quad (3)$$

т. е. на фоне линейного фотоотклика $\Omega^{(1)} \approx \text{const}$ будет иметь место нелинейный резонанс $\Omega^{(3)} \equiv \Delta\omega_1^{(3)}$. По своим параметрам последний физически идентичен резонансу насыщенной дисперсии в биениях двухмодового лазера [5] и в той же мере обеспечивает характерное для нелинейной лазерной спектроскопии спектральное разрешение, ограниченное уже однородной (в пределе – радиационной) шириной поглощающего перехода. Зависимость параметров этого резонанса от интенсивности не скажется на чувствительности. Последняя определяется независимым от характеристик генерации линейным пьедесталом $\Omega^{(1)}$.

Итак, открывается перспектива развития нового метода лазерной спектроскопии при дисперсионном нарушении эквидистантности трех генерируемых мод и детектировании возникающей при этом малочумящей низкой частоты биений. Основное условие этого – экспериментально зарегистрированное в [1] наличие в спектре биений трех слабонезквидистантных мод лазера с широкой однородной линией усиления компоненты с частотой, равной разности межмодовых частотных интервалов. В этой разности компенсируются технические флуктуации оптической длины резонатора. Нет оснований сомневаться в нарушении эквидистантности мод резонансной дисперсией внутрирезонаторного поглотителя, не должен вызывать дискуссии и прогноз близкой к (1) чувствительности. Он основан на расчете линейной дисперсии (2), для которой оценка (1) получила количественное подтверждение в двухмодовом эксперименте [3]. Наблюдение нелинейного резонанса (3), который связан с самонасыщением дисперсии одной из мод и хорошо известен не только в теории, но и в эксперименте [5], вполне реально. В целом же речь идет о реализации физического механизма преобразования взаимодействия оптического поля с веществом в сигнал звуковой (инфразвуковой) частоты. Привлекает то, что столь радикальное преобразование не потребует никаких технических манипуляций с лазерным излучением, а будет осуществляться автоматически в силу самой физической природы лазера. Немаловажна возможность использования обычной техники фотодетектирования с низким быстродействием, которая отсекает высокочастотные компоненты основного спектра биений.

Экспериментальная реализация сведется, главным образом, к рациональному инженерному решению проблемы получения необходимой несимметричной настройки и к контролю положения генерируемых частот на профиле линии поглощения. Один из реальных вариантов – это предварительная настройка трехмодового спектра по частотному резонансу насыщенной дисперсии (3), который успешно используется как репер в прецизи-

онной лазерной метрологии [5]. Не должно смущать некоторое возможное усложнение установки при введении в нее петли отрицательной обратной связи. В работе [6], например, предложена схема, которая характеризуется не менее чем четырьмя стабилизированными взаимосвязанными параметрами при оптическом согласовании внешнего измерительного интерферометра сверхвысокой добротности (резкость 10^4) с резонатором лазера и при модуляции излучения последнего с частотой ~ 1 ГГц, девиацию которой следовало регистрировать с погрешностью до 0.01 Гц. По смыслу рассматриваемой здесь задачи речь идет только о непрецизионной локализации ω_1 внутри того частотного интервала $c/2L$, который «охватит» ω_0 . Этот интервал на порядок меньше характерного расстояния между частотами генерации $\omega_{12} = \omega_{23} \sim \Delta\nu_D$ [1–4], и для линейного фотоотклика $\Omega^{(1)}$ нестабильность ω_1 внутри него не критична.

Что касается возможностей прецизионной оптической стабилизации эквидистантного трехмодового спектра, то представляется более предпочтительным использование линии поглощения с $\gamma \ll \Delta\nu_D \ll \omega_{12} = \omega_{23}$ при настройке на ω_0 частоты ω_2 центральной моды. В пределах $|\omega_2 - \omega_0| \sim \gamma$ линейного пьедестала $\Omega^{(1)}$ не будет. Непосредственно на низкочастотном фоне должен образоваться нелинейный резонанс $\Omega^{(3)} \equiv 2|\Delta\omega_2^{(3)}|$, где $\Delta\omega_2^{(3)}$

дается выражением (3) при замене в нем нижних индексов $1 \leftrightarrow 2$. Он будет четно-симметричным по $\omega_2 - \omega_0$, в отличие от нечетно-симметричной формы резонанса (3), а низкочастотные осцилляции в различных крыльях этой «бабочки» должны быть противофазными.

1. Коновалов И.П. *Квантовая электроника*, **24**, 833 (1997).
2. Коновалов И.П. *Квантовая электроника*, **24**, 325 (1997).
3. Konovalov I.P. *Spectrochimica Acta B*, **48**, 575 (1993).
4. Коновалов И.П., Логинов Ф.В. *Квантовая электроника*, **23**, 238 (1996).
5. Tyurikov D.A., Gubin M.A., Shelkovnikov A.S., Koval'chuk E.V. *IEEE Trans. on Instr. Measur.*, **44**, 166 (1995).
6. Mugino A., Yamamoto T., Omatsu T., Gubin M.A., Morinaga A., Taceuchi N. *Opt. Rev.*, **3**, 243 (1996).

I.P.Konovalov. Application of the operation of a broad-band laser in intracavity dispersion frequency-domain spectroscopy.

The beats of a three-mode dye laser, containing a component with a frequency close to the difference between neighbouring mode spacings, the technical fluctuations of which cancel out, are considered. The aim is to develop a laser spectroscopic method with a detection limit of the order of $10^{-10} - 10^{-11} \text{ cm}^{-1} \text{ Hz}^{-1/2}$, determined by the natural frequency fluctuations and by the spectral resolution limited by the homogeneous width of the resonance line. Use was made of the unequal changes in two mode spacings of an equidistant three-mode spectrum, caused by the dispersion of the absorption line of an intracavity absorber, and of the detection of the resulting difference frequency.