

Thermische Resonatoreffekte in organischen Farbstofflasern

G. ZEIDLER

Forschungslaboratorium der Siemens AG, München

(Z. Naturforsch. 27 a, 1272—1277 [1972]; eingegangen am 24. Juni 1972)

Thermal Resonator Effects in Organic Dye Lasers

Thermal resonator effects are studied in laser pumped organic dye lasers with the longitudinal pumping arrangement. If the distribution of the pump light is a Gaussian, a diverging lens is induced by the thermal gradient in the dye solution. This thermal lens was compensated by using a suitable resonator set-up with an adjustable telescope. Divergence and bandwidth of the tunable laser were reduced considerably by using the proper compensation. If the angular position of the pump beam is shifted, the axes of laser resonator and thermal lens are different, causing beam deflection and wavelength shifting of the output laser beam. Therefore, high stability and mode purity of the pump laser is important to get a well defined output laser beam.

1. Einleitung

In allen Lasermedien wird der Laserprozeß von einem Wärmeumsatz begleitet, der wegen der Abhängigkeit der Brechzahl des Mediums von der Temperatur zu einer mehr oder weniger stark ausgeprägten Beeinflussung des optischen Resonators führt. Der Brechungsindex organischer Lösungsmittel hängt relativ stark von der Temperatur ab. Es ist also bei organischen Farbstofflasern, auch bei kleinen Pumpenergien und somit bei geringem Energieumsatz in der Farbstofflösung, mit einer Störung des optischen Resonators zu rechnen. Dieser Effekt wird wesentlich beeinflusst von der räumlichen Verteilung des pro Volumen absorbierten Pumplichtes, ist also abhängig von der anregenden Lichtquelle und von der Fokussierung des Pumplichtes in die Laserküvette.

Bei einem abstimmbaren Farbstofflaser, der mit einer Blitzlampe angeregt wurde, wurden die Auswirkungen der thermischen Resonatoreffekte auf Divergenz und Bandbreite der Emission in ^{1, 2} beschrieben. In der vorliegenden Arbeit sollen die Resonatorstörungen experimentell und theoretisch untersucht werden, wie sie bei Farbstofflasern auftreten, die längs ihrer Achse durch einen Pumpstrahl angeregt werden. Diese „longitudinale“ Anregungsart ist besonders wichtig, da sie wegen des hohen Wirkungsgrades in jüngster Zeit den kontinuierlichen Betrieb organischer Farbstofflaser ermöglichte ³ und überhaupt gut geeignet ist, Farbstofflaser mit anderen Hochleistungslasern anzuregen.

Die Analyse wird sich besonders mit den für die Anwendung wichtigen Kenngrößen der Laserstrahlung, Divergenz und Bandbreite, befassen. Die ex-

perimentellen Ergebnisse sollen mit den Aussagen einer geometrisch optischen Rechnung verglichen werden.

2. Longitudinale Pumpanordnung

Bei allen Messungen wurde die Farbstofflösung (Rhodamin B in Äthanol) mit der Emission eines in seiner Strahlungsfrequenz verdoppelten YAG : Nd³⁺-Riesenimpuls lasers angeregt. Dieser Laser arbeitet mit einer Wiederholfrequenz von 50 Hz, liefert bei einer Wellenlänge von $\lambda = 0,53 \mu\text{m}$ eine Spitzenleistung von 50 kW bei einer Impulshalbwertsbreite von 20 ns. Der Resonator war so dimensioniert, daß dieser Laser nur im Grundmodus oszillierte, die Strahlung hatte also eine Querschnittsverteilung, die recht genau einer Gauß-Funktion entsprach. Die Bandbreite des YAG : Nd³⁺-Lasers war durch einen speziellen Resonanzreflektor ⁴ auf unter 1 GHz eingeschränkt, so daß auch der zeitliche Verlauf des Laserimpulses durch eine glatte Glockenkurve ohne nennenswerte Kurzzeitschwankungen gegeben war. Die Spitzenleistung schwankte von Impuls zu Impuls in einem Meßintervall von etwa 1/2 Stunde um $\pm 10\%$.

Diese wohldefinierte Laserstrahlung wurde mit einer langbrennweitigen Linse in die Farbstoffküvette fokussiert. Diese Laserküvette war Teil eines abstimmbaren Farbstofflasers, dessen prinzipieller Aufbau in Abb. 1

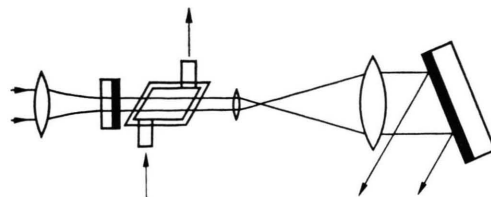


Abb. 1. Aufbau des organischen Farbstofflasers.

zu sehen ist. Das Pumplicht wurde durch einen dielektrischen Spiegel eingestrahlt, dessen Reflexionsfaktor eine stark ausgeprägte Kante hatte, so daß für die Pumpstrahlung bei $0,532 \mu\text{m}$ ein kleiner Reflexions-

faktor, für die Laserstrahlung bei $0,6 \mu$ ein hoher Reflexionsfaktor wirksam war. Als Auskoppelspiegel wurden in der üblichen Weise¹ Reflexionsgitter verwendet. Zur Strahlaufweitung war ein Teleskop im Resonator vorgesehen, das einerseits die Divergenz am Gitter und somit die Bandbreite der Emission verkleinerte, andererseits durch ein Verstellen des Linsenabstandes eine Kompensation der thermisch induzierten Resonatorstörungen erlaubte.

3. Brechungsindexverteilung in der Farbstofflösung

Im Aufbau nach Abb. 1 wird die Farbstoffküvette längs der Resonatorachse durch einen Pumpstrahl mit Gaußscher Querschnittsverteilung angeregt. Die pro Volumen absorbierte Pumpenergie und die daraus resultierende Temperaturerhöhung pro Impuls folgt dann ebenfalls einer Gauß-Funktion:

$$\Delta T = \Delta T_0 \cdot e^{-\beta x^2} \cdot e^{-\alpha z}. \quad (1)$$

Es bedeuten: z eine Koordinate in Resonatorlängsrichtung, x eine Koordinate in radialer Richtung, α die Absorptionskonstante der Lösung, β die radiale Ausdehnung des Temperaturprofils, ΔT_0 die α , β und der Pumpenergie proportionale Übertemperatur in der Resonatorachse.

Die Konzentration der Lösung war so gewählt, daß das Pumplicht längs der z -Achse nach etwa 40 mm auf $1/e$ abgefallen war ($\alpha = 1/40 \text{ mm}^{-1}$). Da nur 10 mm lange Küvetten verwendet wurden, kann der Gradient in z -Richtung gegenüber dem in radialer Richtung vernachlässigt werden.

Weiterhin wird für die folgende Rechnung die Gauß-Funktion in der Umgebung der Laserachse durch eine Parabel angenähert:

$$\Delta T \approx \Delta T_0 (1 - \beta x^2). \quad (2)$$

Die Temperatur nimmt von der Laserachse ausgehend mit zunehmendem Radius ab. Der Brechungsindex nimmt, wegen $\partial n / \partial T < 0$ in dieser Richtung zu:

$$n = n_0 (1 + |\partial n / \partial T| \beta \Delta T_0 x^2) = n_0 (1 + d x^2). \quad (3)$$

4. Strahlgeometrische Theorie

Die Lichtstrahlen in einem Medium mit in radialer Richtung quadratisch abnehmendem Brechungsindex wurden in⁵ berechnet. Ein Stück dieses Mediums wirkt als Sammellinse. Diese Sammellinseneffekt kennzeichnet die Emission von Festkörper-

lasern. Zum Beispiel wurde dies in^{6,7} am Verhalten eines kontinuierlich gepumpten Rubinlasers und in⁸ am kontinuierlichen YAG : Nd³⁺-Laser nachgewiesen.

Im Gegensatz zu diesen Festkörperlasern nimmt beim hier beschriebenen Farbstofflaser der Brechungsindex mit dem Radius zu (3). Die Lichtstrahlen werden also nicht durch eine Sammelwirkung zur Achse hin gebrochen, sondern sie werden zerstreut.

Die Berechnung der Strahlwege kann in Analogie zur Rechnung in⁵ durchgeführt werden. Wegen des positiven Vorzeichens in (3) erhält man anstatt der trigonometrischen Funktionen in⁵ jetzt Exponentialfunktionen und die daraus gebildeten Hyperbelfunktionen.

Die allgemeine Lösung für die Strahlwege in einem Medium nach (3) lautet

$$x = x_0 \cdot \cosh \sqrt{d} z + (x_0' / \sqrt{d}) \sinh \sqrt{d} z. \quad (4)$$

Hierbei bedeutet x_0 die Koordinate dieses Strahles bei $z=0$ und x_0' die entsprechende Steigung.

Fällt ein zur z -Achse paralleles Strahlenbündel ($x_0' = 0$) auf dieses Medium (Ausdehnung von $z=0$ bis $z=L$), so werden diese Strahlen im Medium entsprechend $\cosh \sqrt{d} z$ auseinanderlaufen. Berechnet man die Tangentenschar der aus dem Medium austretenden Strahlen, so sieht man, daß diese die z -Achse im gleichen Punkt schneiden, der somit als virtueller Brennpunkt einer entsprechenden Zerstreuungslinse aufgefaßt werden kann (Abbildung 2).

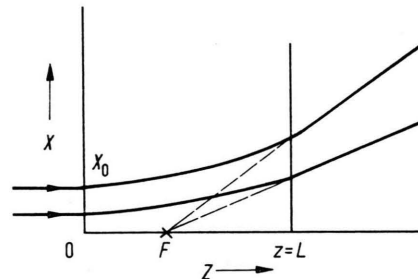


Abb. 2. Aufweitung eines parallelen Strahlenbündels durch ein Stück eines von $z=0$ bis $z=L$ ausgedehnten inhomogenen Mediums.

Berücksichtigt man die Brechung beim Austritt aus dem Medium, so wird die Brennweite

$$f = -\frac{1}{n\sqrt{d}} \operatorname{ctanh} \sqrt{d} L. \quad (5)$$

Die Theorie eines optischen Resonators, der ein Stück eines solchen Mediums enthält, kann also im

Rahmen der geometrisch optischen Näherung wesentlich vereinfacht werden.

Sind im Resonator noch Kugelspiegel und Linsen vorhanden, so wird die Zerstreungslinse des Lasermediums mit diesen zusammen nach den bekannten Transformationsgesetzen⁹ verarbeitet, um den äquivalenten, konfokalen Resonator mit seiner bekannten Feldverteilung zu erhalten.

5. Resonator des abstimmbaren Lasers

Die Auswirkungen dieser thermisch induzierten Zerstreungslinse wurden am Verhalten des in Abbildung 1 beschriebenen Resonators eines abstimmbaren Farbstofflasers untersucht. Beim Reflexionsgitter ist die Bandbreite des reflektierten Lichtes der Divergenz proportional. Das Teleskop in Abb. 1 verringert die Divergenz der Strahlung am Gitter um die Teleskopvergrößerung. Ist keine Linsenwirkung in der Küvette vorhanden, so muß das Teleskop auf Unendlich eingestellt werden. Wird dagegen in der Küvette eine Zerstreungslinse durch den Pumpprozeß erzeugt, so muß das Teleskop defokussiert werden, um wieder die kleinstmögliche Divergenz und somit die kleinste Linienbreite zu erzeugen (Abbildung 3).

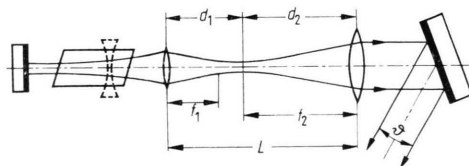


Abb. 3. Kompensation der thermisch induzierten Zerstreungslinse durch Verstellen des Teleskops.

Die Divergenz am Gitter kann mit Hilfe der bekannten Transformationsgesetze Gaußscher Strahlen berechnet werden⁹. In der Gegend des linken, ebenen Spiegels tritt eine Strahltaile auf, die durch die thermische Zerstreungslinse der Farbstoffküvette und durch die 1. Teleskoplinse in das Innere des Teleskops abgebildet wird (Abbildung 3). Diese Taile mit dem Fleckradius w_1 wird durch die zweite Teleskoplinse in die (außerhalb des Resonators liegende) Taile mit dem Fleckradius w_2 transformiert. Es gilt für den Grundmodus

$$\frac{1}{w_2} = \sqrt{\frac{1}{w_1^2} \left(1 - \frac{d_2}{f_2}\right)^2 + \frac{1}{f_2^2} \left(\frac{\pi w_1}{\lambda}\right)^2}. \quad (6)$$

Durch diese vergrößerte Taile wird zufolge $\vartheta = \lambda/\pi w_2$ die Fernfelddivergenz der am Gitter

austretenden Welle bestimmt. Mit

$$f_2 - d_2 = L - L_\infty + f_1 - d_1$$

folgt also

$$\vartheta = \frac{\lambda}{\pi f_2} \sqrt{\frac{1}{w_1^2} (L_\infty - L + d_1 - f_1)^2 + \left(\frac{\pi w_1}{\lambda}\right)^2}, \quad (7)$$

wobei $L_\infty = f_1 + f_2$ der Hauptebenenabstand des auf Unendlich fokussierten Teleskops ist.

Dieser Zusammenhang wurde experimentell nachgeprüft. In der Anordnung nach Abb. 3 wurde die Teleskoplänge L durch Verschieben der 2. Linse verändert. Das Ergebnis dieses Experiments ist in Abb. 4 aufgetragen. Die Divergenz 2ϑ zeigt als Funktion der Teleskopverstellung $L - L_\infty$ den durch Formel (7) geforderten Hyperbelzusammenhang. Die minimale Divergenz tritt nicht für $L = L_\infty$ auf, sondern das Teleskop muß auf Grund der thermischen Zerstreungslinse defokussiert werden, um die optimale Resonatorkonfiguration einzustellen. Die minimale Divergenz tritt nach (7) für $d_2 = f_2$, also für $L - L_\infty = d_1 - f_1$ auf. Dies ist nach Abb. 4 für $L - L_\infty = 7$ mm der Fall. Daraus und aus der Kenntnis der übrigen Abmessungen läßt sich die in der Laserküvette thermisch induzierte Brennweite f abschätzen. Man erhält etwa $f = -25$ mm.

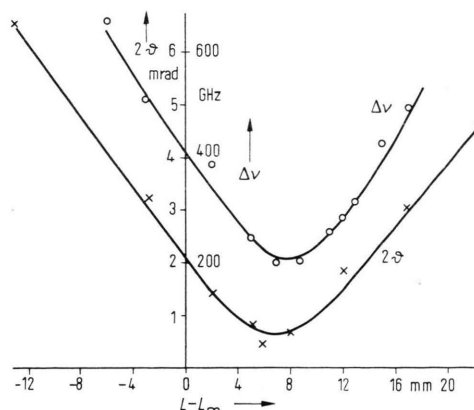


Abb. 4. Divergenz 2ϑ und Bandbreite $\Delta\nu$ der Emission als Funktion der Teleskopverstellung $L - L_\infty$.

In Abb. 4 ist weiterhin die im Experiment gemessene Bandbreite der Laseremission eingezeichnet. Man sieht, daß die Bandbreite, ebenso wie die Divergenz, von der Teleskopdefokussierung abhängt. Ein Vergleich der Meßwerte mit den aus den Gitterkonstanten (Blazewinkel und Strichzahl) und der Divergenz berechneten Bandbreiten¹⁰ zeigt weiterhin, daß der Laser im ganzen vom Gitter erlaubten Band emittiert. Dies ist auf die hohe Verstärkung

des Farbstofflasers zurückzuführen. Im Experiment wurde zur Erzielung der maximalen Ausgangsleistung die Emission des Pump lasers mit einer langbrennweitigen Linse in die Küvette fokussiert, so daß in einem Faden von 0,2 mm Durchmesser eine Pumpleistungsdichte über 100 MW/cm^2 auftrat und die Küvette trotz Brewster-Fenster knapp unterhalb des Schwellbereiches für Superstrahlung betrieben wurde. Eine Fernfeldanalyse zeigte, daß der Farbstofflaser transversal im Grundmodus strahlte.

Diese Messungen zeigen also klar, daß nur durch Kompensation der thermisch induzierten Zerstreuungslinse die minimal mögliche Divergenz erreicht wird und nur dann mit einem Gitter oder einem Prisma als Abstimmelement die minimal mögliche Bandbreite bei hoher Ausgangsleistung erreichbar ist.

6. Stabilität abstimbarer organischer Farbstofflaser

Bei allen Versuchen, abstimmbare organische Farbstofflaser mit einer frequenzstabilen, schmalbandigen Emission aufzubauen, stellen sich praktische Schwierigkeiten ein.

Die Emissionslinie hüpft zum Teil von Impuls zu Impuls und ist in ihrer Lage zeitlich instabil; ähnliches gilt für das Fernfeld. Man kann mit der oben entwickelten Theorie einen Teil dieser Störungen auf Instabilitäten im Pumplicht zurückführen:

Betrachtet man zum Beispiel einen längs der Achse gepumpten Farbstofflaser, so wird die Lage der Achse und die Größe des sich ausbildenden thermischen Gradienten von Schwankungen der Winkelverteilung und der Energie des Pump lasers abhängen. Gerade solche Schwankungen treten erfahrungsgemäß in der Emission der zum Pumpen benützten Riesenimpuls laser auf, wenn sie nicht besonderen Kontrollen unterworfen werden.

Die Winkelverteilung schwankt teils auf Grund der unterschiedlich anschwingenden transversalen Moden, teils bei mechanisch geschalteten Riesenimpuls laser (Drehspiegel) wegen mechanischer Resonatorinstabilitäten. Der Zeitverlauf der Emission ist bei der Beteiligung vieler Moden einer gewissen Statistik unterworfen, wodurch die momentan zur Verfügung stehende Verstärkung von Impuls zu Impuls schwankt. Alle diese Instabilitäten führen zu Schwankungen der thermisch beeinflussten Brechungsindexverteilung und letztlich zu Instabilitäten der

Emission des Farbstofflasers. Schwankt zum Beispiel die Größe des thermischen Gradienten, so ändert sich nach (5) die Brennweite der thermischen Linse und somit ändern sich die Parameter des äquivalenten konfokalen Resonators. Dies führt zu einer Veränderung von Modenzahl und Divergenz und deshalb auch zu einer Verbreiterung oder Verschmälerung der Emissionslinie.

Schlimmer wirken sich Winkelschwankungen im Pumpstrahl aus. Die Achse des thermischen Gradienten und dessen Gestalt ändern sich relativ zur Laserachse. Die entstehende Laserstrahlung durchläuft also die thermische Linse schräg und außerhalb der Achse, was eine Winkelablenkung des Strahls und somit am Wellenlängenselektor eine Verschiebung der Emissionslinie bewirkt. Alle diese Instabilitäten konnten im Experiment beobachtet und nur dadurch (zum größten Teil) beseitigt werden, daß ein modenreicher Pump laser benutzt wurde. Mit diesem Laser konnten die einzelnen Störeffekte getrennt und definiert beobachtet werden:

a) Beim Erhöhen der Pumpleistung im Laser nach Abb. 1 stiegen Divergenz und Bandbreite der Emission erwartungsgemäß an.

b) Genauer untersucht wurde die Variation der Emission bei Veränderung des Winkels der Pumpstrahlung relativ zur Laserachse. Experimentell wurde dies durch definiertes Verkippen eines Ablenkprismas erreicht. In Abb. 5 ist das Ergebnis zu sehen. Die Lage der Linie verschiebt sich linear mit der Verkipfung des Pumpstrahls. Dies soll nun auch

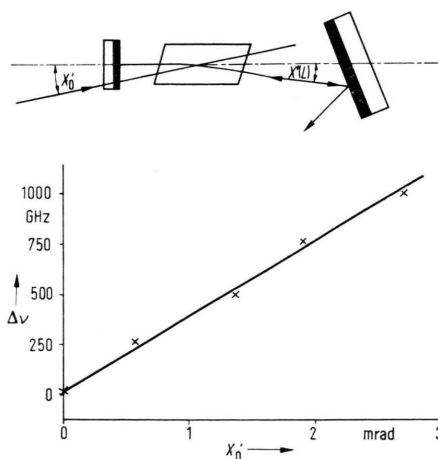


Abb. 5. Verschiebung der Emissionsfrequenz um $\Delta\nu \sim x'(L)$ mit der Richtung der Pumpstrahlung. Diese wird um x_0' gegen die Resonatorachse gekippt.

aus der oben angeführten strahlenoptischen Theorie hergeleitet werden. Die schräg laufenden Lichtstrahlen sind durch die allgemeine Lösung nach (4) beschrieben.

Durch Differenzieren erhält man die Steigung der Lichtstrahlen:

$$x'(z) = x_0 \sqrt{d} \sinh(\sqrt{d} z) + x_0' \cosh(\sqrt{d} z). \quad (8)$$

Bei einer festen Küvettenlänge $z = L$ gilt nach (8) der lineare Zusammenhang

$$x'(L) = c_1 + x_0' c_2; \quad (9)$$

x_0' bestimmt den Winkel zwischen der durch die Normale des Einkoppelspiegels festgelegten Laserachse und der Pumpstrahlung; $x'(L)$ gibt den Austrittswinkel aus der Farbstoffküvette an, der schließlich zur Laseremission bei einer verschobenen Wellenlänge führt. Beim Reflexionsgitter ist diese Verschiebung der Winkeländerung proportional, womit der experimentelle Befund nach Abb. 5 geklärt ist.

Besonders durch dieses Experiment wird die Bedeutung der thermischen Resonatoreffekte in organischen Farbstofflasern klar demonstriert. Eine in Winkelverteilung und Frequenzspektrum stabile Emission ist nur bei stabilen thermischen Verhältnissen und somit bei stabiler Pumplichtverteilung zu erwarten.

7. Thermische Summationseffekte

Bei den oben beschriebenen Versuchen wurde die Farbstofflösung in einem geschlossenen Kreislauf mit einer Pumpe umgewälzt. Die Strömungsgeschwindigkeit war so hoch, daß in den Impulspausen die Flüssigkeitsmenge in der Küvette ausgetauscht wurde. Bei dieser Geschwindigkeit war die Strömung turbulent, es konnten sich somit keine von außen in die Küvette eingeschleppten Druck- oder Temperaturschichtungen stationär erhalten. Offensichtlich reicht die in einem 20-ns-Pumpimpuls zugeführte Pumpenergie aus, um den Brechungsindex zum Zeitpunkt der Farbstofflaseremission, also im letzten Drittel der Pumpimpulsdauer, merklich zu verändern. Bei kleiner werdender Strömungsgeschwindigkeit kommt es zu einer starken Erhöhung der thermischen Resonatorstörung, die bei ruhender Flüssigkeit maximal wird. Dies ist dadurch zu erklären, daß durch Summation das Temperaturgefälle so lange anwächst, bis in der Impulspause die pro Impuls zugeführte Wärmemenge durch Wärmeleitung und eventuell

auch durch Konvektion abgeführt wird. Dieses Anwachsen der dadurch bedingten Resonatorstörung ist in Abb. 6 gezeigt. Es wurde dazu die Divergenz eines 10 mm langen Farbstofflasers mit schwach gekrümmten Spiegeln als Funktion der Zeit nach dem Einschalten des mit 50 Hz pulsierenden Pumplasers gemessen.

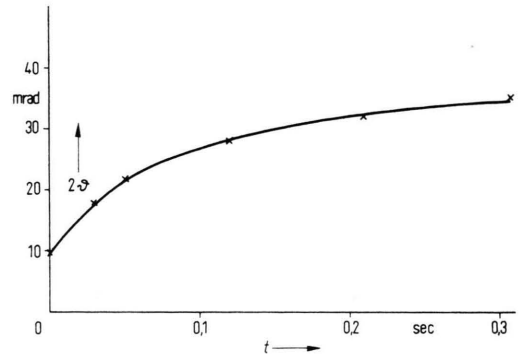


Abb. 6. Divergenz 2θ eines Flüssigkeitslasers ohne Umwälzung als Funktion der Zeit t nach dem Anschalten der Pumpstrahlung.

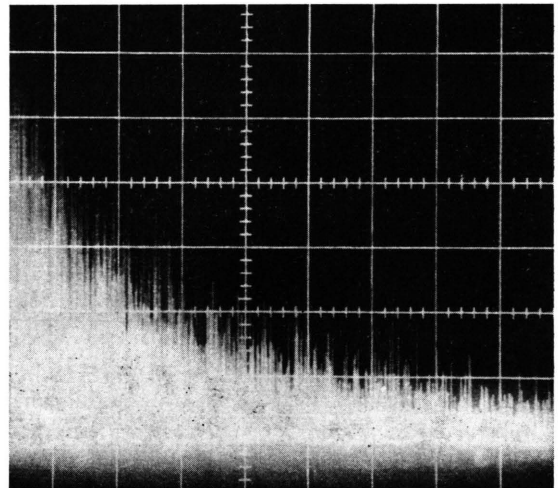


Abb. 7. Laserfunktion in Plexiglas bei hoher Pumpstrahlungsdichte (160 MW/cm^2 Spitzenbelastung, 80 W/cm^2 Dauerbelastung); 5 sec/E ; Impulsabstand 20 ms .

Ein irreversibler Summationseffekt wurde bei Farbstofflasern in Plexiglas festgestellt. Bei hohen Pumpleistungsdichten (Bereich 100 MW/cm^2) und 50 Hz Folgefrequenz nimmt die Ausgangsenergie dieser Laser schnell ab (Abbildung 7). Das Plexiglas weist hinterher eine lochartige Zerstörung auf. In Äthanollösungen des gleichen Farbstoffs konnten thermische Zerstörungseffekte, auch bei lang an-

dauernden Versuchen (10^7 Impulse), nicht beobachtet werden.

Dieser Unterschied weist darauf hin, daß in Farbstofflasern mit ruhender Flüssigkeit die Konvektion eine Rolle spielt. Eine weitere Bestätigung dieser Annahme brachte eine Fernfeldbeobachtung bei diesen Farbstofflasern. Das Fernfeld ist in Richtung der Schwerkraft auseinandergezogen. Bei steigender Pumpleistung nimmt diese Verzerrung zu; bei Drehung der Küvette stellt sie sich schwankend auf die neue Schwerkraftrichtung ein.

8. Ergebnis

Bei longitudinal gepumpten Farbstofflasern kann die thermisch induzierte Resonatorstörung durch eine Zerstreuungslinse beschrieben werden. Will man geringe Divergenz und bei abstimmbaren Lasern geringe Bandbreite, so muß diese Zerstreuungslinse kompensiert werden. Schwankungen in der Emission von Farbstofflasern können durch Änderungen dieser thermischen Linse, also durch Änderungen im Pumplicht, hervorgerufen werden. Nur ein Pump-laser mit reproduzierbarer Feldverteilung liefert eine stabile Farbstofflaseremission. Thermische Summationseffekte können vermieden werden, wenn die Farbstofflösung turbulent durch die Laserküvette strömt.

¹ W. SCHMIDT, Farbstofflaser; Laser und angewandte Strahlentechnik; Nr. 4 [1970], S. 47.

² M. H. GASSMANN, Z. Angew. Math. Phys., Vol. 22 (4), 742 [1971].

³ D. G. PETERSON, S. A. TUCCIO u. B. B. SNAVELY, Appl. Phys. Lett., September [1970].

⁴ H. F. MAHLEIN u. G. SCHOLLMEIER, Appl. Opt. 8, 1197 [1969].

⁵ S. E. MILLER, Bell Syst. Techn. J. 44, 2017 [1965].

⁶ D. RÖSS, J. Appl. Phys. 37, 3587 [1966].

⁷ G. ZEIDLER, Z. Naturforsch. 22 a, 909 [1967].

⁸ V. BAUMGARTNER u. J. SCHUBERT, Z. Naturforsch. 24 a, 1382 [1969].

⁹ W. KLEEN u. R. MÜLLER, Laser, Springer-Verlag, Berlin 1969, S. 70–80.

¹⁰ M. BORN u. E. WOLF, Principles of Optics, Pergamon Press, London 1965, S. 408.