

INTERACCION ENTRE DOS MODOS EN UN LASER DE COLORANTES

D.M. Fondevila, A.A. Hnilo

Centro de Investigación en Láseres y Aplicaciones CEILAP (CITEFA-CONICET)
Zufriategui 4380 - (1603) - Villa Martelli - Buenos Aires - Argentina
e-mail: hnilo@udceilap.edu.ar, fondevila@datamarkets.com.ar

Como un paso hacia la comprensión del mecanismo de formación de estructuras en láseres con elevado número de Fresnel, se estudió experimentalmente la interacción entre dos modos montando un dispositivo en el que dos haces de bombeo (provenientes de un láser de Nd:YAG doblado) definen dos mini-láseres de colorante que comparten la misma cavidad. La separación (y por lo tanto el acople) entre ambos modos puede variarse a voluntad. Se observó enganche de fase a distancias de hasta 16 diámetros del bombeo y, a distancias de entre 1-3 diámetros, un conspicuo corrimiento espectral hacia el rojo. Este último puede explicarse en base a un modelo sencillo para las poblaciones de los niveles. Se concluye que una descripción de la formación de estructuras en láseres de colorante basada en un campo de osciladores no lineales (Ginzburg-Landau) debe suponer que éstos son *soft oscillators*.

As a step towards understanding pattern formation in high Fresnel number dye lasers, we experimentally studied the dynamics of two interacting pumped regions with a setup in which two pump beams (coming from a doubled Nd:YAG laser) define two mini dye lasers that share the same cavity. Their separation (and therefore their coupling) can be varied at will. Phase coupling was observed for separations of up to 16 pump beam diameters and a conspicuous spectral shift towards long-wavelengths was measured for separations of between 1 and 3 diameters, which can be explained by a simple model for the molecular populations. We conclude that a description of the formation of spatial structures in dye lasers based upon a model of a field of coupled nonlinear oscillators (Ginzburg-Landau), must assume that these are *soft oscillators*.

I. INTRODUCCION

La formación espontánea de estructuras espaciales en sistemas homogéneos descritos por ecuaciones no-lineales, ha sido estudiada en forma intensiva en diferentes campos. Transiciones de este tipo están asociadas a un fenómeno llamado rompimiento espontáneo de la simetría y pueden dar soluciones estables que no poseen las mismas simetrías del sistema, incluyendo sus condiciones de contorno⁽¹⁾.

En el campo de la óptica cuántica, la formación de estructuras ha sido observada en sistemas pasivos así como en sistemas activos en cavidades con número de Fresnel elevado de manera de permitir la oscilación de muchos modos transversales.

La mayor parte del trabajo teórico ha sido desarrollado para láseres con ensanchamiento homogéneo de clase A (láseres que cumplen la condición $\gamma_1 \gg \gamma_2 \gg k$) ya que se puede, en este caso, realizar la eliminación adiabática de la polarización, tanto como de la inversión de población, reduciendo de esta forma la dinámica a una sola ecuación por modo.

En un primer trabajo experimental con láseres de Clase A con elevado número de Fresnel, se observó una compleja dinámica de formación de estructuras cuyas características principales sólo pudieron explicarse parcialmente⁽²⁾.

Para acercarnos a la explicación de este fenómeno, decidimos estudiar la interacción entre

únicamente dos modos en función de su separación. En este trabajo presentamos los resultados de este estudio.

II. DISPOSITIVO EXPERIMENTAL

Se crearon dos volúmenes activos separados dentro de una celda de colorante (25mm de diámetro y 1mm de espesor) por la cual circula una solución de Rodamina 6G (con una concentración de $3 \cdot 10^{-4}$ M) en una mezcla de etanol y etilenglicol. La ventana de entrada de la celda se fabricó de cuarzo para evitar daños en la misma por las altas potencias de bombeo; la de salida es de vidrio BK7 con tratamiento anti-reflex. Los volúmenes activos se consiguieron dividiendo un único haz de bombeo en dos, de aproximadamente igual energía, mediante un divisor de haz que, montado sobre un carrito trasladador, permite variar la separación de los mismos a voluntad (ver fig. 1).

La radiación de bombeo provino de un láser de Nd:YAG en modo Q-switch que, doblado en un cristal KTP, permitió trabajar con pulsos de 60ns FWHM de duración y una energía aproximada de 300µJ a una repetición de 250Hz. La cavidad resonante se eligió plano-plano, de manera de poder tener los dos medios activos laseando con las mismas condiciones de alineación. Un espejo dielectrico (alta reflectividad en el rango 550nm-580nm y alta transmisividad en 532nm) permitió bombear en forma colineal al eje de la cavidad. Los haces de bombeo fueron focalizados sobre la celda mediante una lente (f=25cm) con tratamiento AR, a un diámetro de típicamente 0,5mm.

El espectro de la radiación se obtuvo utilizando una red de difracción de reflexión, proyectando el orden -1 en una pantalla translúcida y registrando la imagen

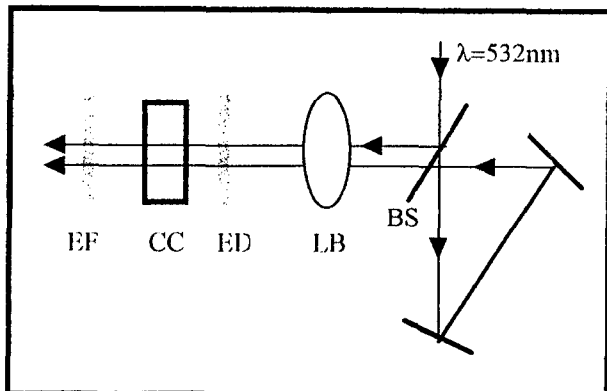


Figura 1: Esquema del dispositivo experimental: Separación de bombeo en dos haces. CC: celda de colorante. EF: espejo de fondo. ED: espejo dielectrico. LB: lente de bombeo. BS: beamsplitter. Radiación de bombeo en 532nm.

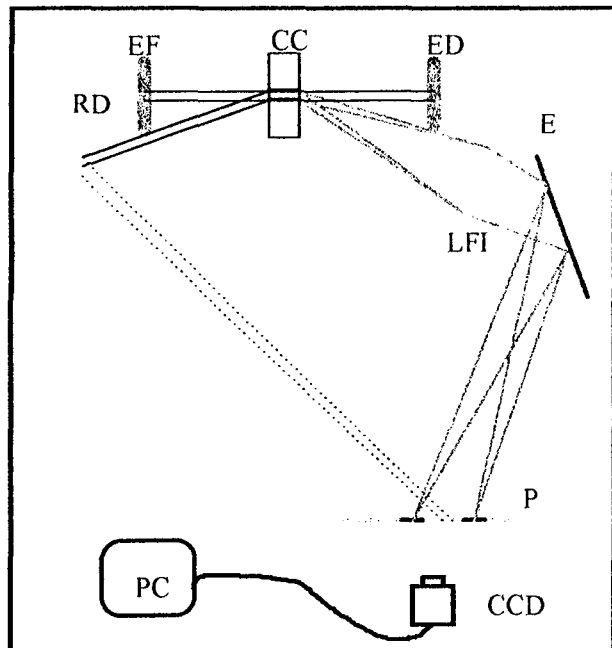


Figura 2: Esquema del dispositivo experimental: Medición de espectro y separación entre volúmenes activos. CC: celda de colorante. ED: espejo dielectrico. EF: espejo de fondo. (la radiación láser sale de la cavidad a través de una reflexión en la celda gracias a una pequeña inclinación de la misma) LFI: lente formadora de imagen. E: espejo para ubicar la imagen en la pantalla. RD: red de difracción para proyectar el espectro en la pantalla. P: pantalla translúcida. CCD: cámara CCD para tomar imágenes. PC: computadora que adquiere imágenes a través de interfase.

con una cámara CCD conectada a una computadora (ver figura 2). Los valores absolutos de longitud de onda se obtuvieron usando un espectrómetro de absorción atómica y dos longitudes de onda de referencia para calibrar las posiciones de los espectros en la imagen.

La separación entre los medios activos se midió utilizando una lente convergente ($f=10\text{cm}$) que, colocada cerca del espejo de entrada (ver fig. 2), forma una imagen de la fluorescencia que emiten las zonas de colorante bombeadas, sobre una pantalla (la misma que se utiliza para la medición de los espectros). Esta imagen es registrada nuevamente por la cámara CCD y los valores absolutos de distancia son obtenidos tomando (en idénticas condiciones) la imagen de un objeto de dimensiones conocidas como referencia, que en nuestro caso fue un pinhole de $530\mu\text{m}$ de diámetro.

III. RESULTADOS EXPERIMENTALES

En la figura 3 se puede ver la posición del máximo del espectro (λ_m) en función de la separación (S) entre los modos, en unidades del diámetro de la zona excitada.

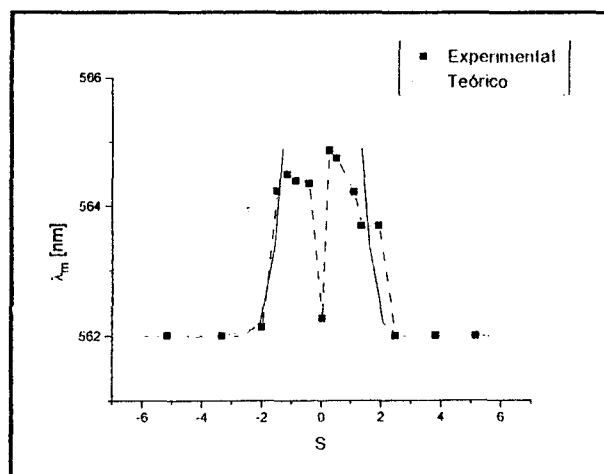


Figura 3: Posición del máximo del espectro (λ_m) en función de la separación (S) entre los modos, en unidades de diámetro de zona excitada ($D_M=0.5\text{mm}$). Ambos modos tienen igual espectro.

Se puede observar un corrimiento de color hacia el rojo para $S < 3$. La observación experimental mostró que λ_m es independiente de la densidad de energía del bombeo. Este hecho se puede ver para $S=0$ (dos haces de bombeo perfectamente superpuestos) ya que esta situación es físicamente idéntica a la de un único haz de bombeo del doble de energía, recobrando de esta manera el color de los modos no interactuantes (S grande). La línea continua en el gráfico está dada por el modelo teórico descrito en la sección IV que, como se puede ver, concuerda bien con los valores experimentales. La razón por la cual no está graficada para S chicos es que el modelo supone que el mecanismo de acoplamiento es solamente a través de la superposición de los campos. La superposición de las zonas con ganancia, a medida que se acercan los modos, no están tomadas en cuenta por el modelo sencillo descrito en este trabajo.

Se observó acoplamiento de fase para separaciones de 16 diámetros usando un interferómetro Mach-Zehnder. Tomando la salida del láser a través de una lente se pudo observar una serie de figuras de

interferencia para distintas condiciones de enganche de fase (ver fig. 4). A medida que se acercan los dos modos en forma continua y suave se pudo observar que, para ciertas separaciones, se producen transiciones abruptas entre las distintas figuras, coincidiendo con un aumento en las fluctuaciones en el espectro del láser.

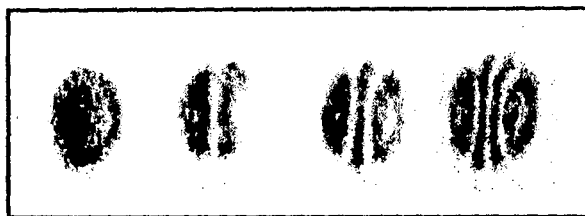


Figura 4: Imágenes de estructuras con franjas claras y oscuras, tomadas haciendo pasar la salida del láser a través de una lente, para distintas separaciones de los modos. Las separaciones para cada una de las estructuras (en unidades de diámetro de la zona excitada) son: $S=0$, $S=1.3$, $S=1.8$ y $S=2.3$ respectivamente.

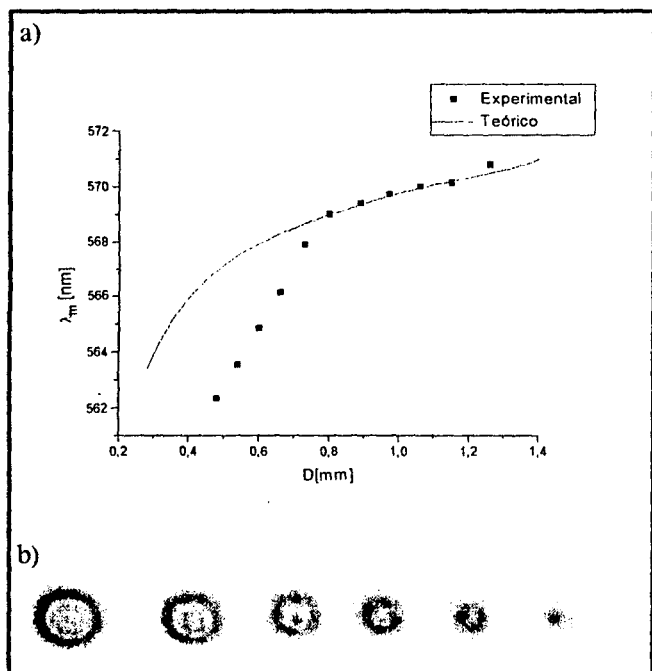


Figura 5: a) Longitud de onda de máxima intensidad del espectro (λ_m) en función del diámetro de la apertura que impone la inversión de población (D) para un único modo. Junto con los datos experimentales, se muestra la curva teórica calculada con el modelo descrito en la sección IV, usando la aproximación gaussiana. b) Imágenes de la salida del láser para los primeros seis puntos experimentales de menor diámetro en forma ordenada (de menor a mayor). Los puntos experimentales que se ajustan a la curva teórica, tienen un modo TEM_{00} (última imagen).

El modelo teórico diseñado para caracterizar la dinámica de color con dos modos interactuantes, predice un corrimiento de frecuencia en función de las pérdidas del sistema para un único modo. Para verificar la consistencia del modelo, se realizó una medición de la posición del máximo del espectro (λ_m) para distintos

valores de pérdidas para una única zona activa presente. Esto se hizo modificando el enfoque del bombeo (a energía constante), variando de esa manera el diámetro de la abertura impuesta por la ganancia (D) y, en consecuencia, el valor de las pérdidas. La figura 5a muestra una medición de λ_m en función de D para un único haz de bombeo. Como un D más chico implica mayor pérdida, el gráfico está manifestando un corrimiento hacia longitudes de onda grandes para pérdidas decrecientes. Para D menores que 0,8mm los datos experimentales muestran una variación abrupta en la pendiente, que viene acompañado con un cambio importante en la forma espacial de la salida. El modo se va tornando progresivamente más grande (debido a una creciente divergencia angular) y desplegando una estructura de anillos concéntricos que asemejan a la que produce la difracción de Fresnel en una abertura circular (ver figura 5b). Las primeras especulaciones, atribuían el fenómeno a un efecto de lente térmica, pero esto fue descartado luego de verificar que no mostraba dependencia con la densidad de energía entregada en el bombeo. Un análisis posterior (ver Apéndice), reveló que se trataba de la ruptura de la aproximación del perfil gaussiano de la ganancia, para diámetros pequeños. Por lo tanto, se verifica la consistencia del modelo en la zona donde la aproximación gaussiana es válida ($D \geq 0,8\text{mm}$).

IV. MODELO TEORICO PARA CORRIMIENTO DE COLOR

Resolviendo las ecuaciones de balance usuales para el láser de colorante⁽³⁾ se obtienen las poblaciones moleculares de equilibrio para los niveles de energía:

$$\begin{cases} N_1 = \frac{(W + \Phi\sigma_a)N\tau_l}{1 + \Phi\sigma_e\tau_l + (\tau_l + \tau_p)(W + \Phi\sigma_a)} \\ N_0 = \frac{(1 + \Phi\sigma_e\tau_l)N}{1 + \Phi\sigma_e\tau_l + (\tau_l + \tau_p)(W + \Phi\sigma_a)} \\ N_l = \frac{(W + \Phi\sigma_a)N\tau_p}{1 + \Phi\sigma_e\tau_l + (\tau_l + \tau_p)(W + \Phi\sigma_a)} \end{cases} \quad (4.1)$$

Donde Φ es la intensidad del láser, W representa la intensidad del bombeo, σ_e , σ_a , σ_l son las secciones eficaces del primer estado excitado, el fundamental y el triplete respectivamente (ver figura 6), y τ_p y τ_l son los tiempos de decaimiento para la fosforescencia y el "intersystem crossing"⁽⁴⁾.

Aunque la intensidad de bombeo es una función del tiempo, se puede ver de una simulación numérica (fig. 7), que durante la mayor porción del pulso láser (95%) las poblaciones moleculares son aproximadamente constantes, haciendo que la suposición de estado estacionario sea aceptable.

La ganancia del sistema (γ), está dada por $N_l\sigma_e - N_0\sigma_a - N_l\sigma_l$ por lo tanto, el máximo de emisión se va

a producir a la longitud de onda para el cual este balance sea más favorable.

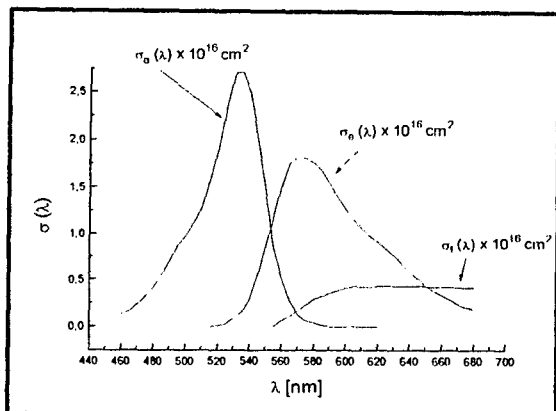


Figura 6: Información espectrofotométrica de las secciones eficaces de los estados fundamental (σ_0), primer excitado (σ_1) y triplete (σ_3) para el colorante Rodamina 6G. (Obtenida de la Referencia⁽⁴⁾)

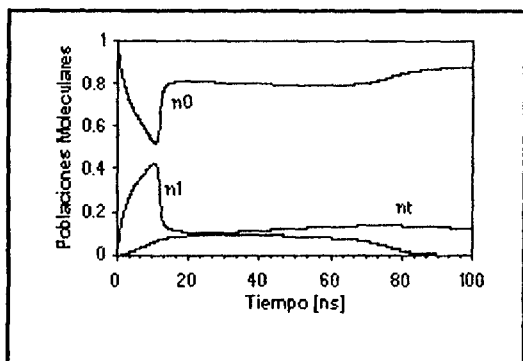


Figura 7: Simulación numérica de la evolución de las poblaciones moleculares de los estados fundamental (n_0), primer excitado (n_1) y triplete (n_3), normalizados a la concentración de colorante. La mayor parte de la energía del pulso láser ocurre entre los 20 ns y los 80 ns.

Se puede entender el mecanismo físico de corrimiento de color de la siguiente manera: tomando Φ como parámetro de las ecuaciones (4.1), si aumenta Φ , N_0 crece y N_1 decrece. Esto implica que la absorción del estado fundamental se hace más importante y la del triplete menos, a medida que la intensidad del láser crece, haciendo que el máximo de ganancia se corra hacia longitudes de onda mayores. En el caso de dos modos interactuantes, a medida que se aproximan, existe una mayor inyección de campo de uno en el otro, dando un incremento en la intensidad total del láser (a expensas del ASE) y, por ende, el correspondiente corrimiento de color hacia el rojo.

Para obtener la curva teórica de la figura 3, escribimos las ecuaciones de evolución de los campos en la manera usual, sólo que agregando un término para la inyección del campo vecino, que es proporcional a un coeficiente de acoplamiento (α), definido como la integral de superposición de los campos ($\alpha(S) = \exp(-S^2/2\omega^2)$).

$$\begin{cases} \frac{d\Phi_1}{dt} = \Phi_1(\gamma_1 - k_1) + \alpha \Phi_2 \\ \frac{d\Phi_2}{dt} = \Phi_2(\gamma_2 - k_2) + \alpha \Phi_1 \end{cases} \quad (4.2)$$

donde γ_i y k_i son la ganancia y las pérdidas de los respectivos campos.

De éstas uno obtiene, imponiendo la condición de estado estacionario ($d\Phi_i/dt=0$) y argumentos de simetría ($\Phi_1 = \Phi_2 = \Phi$), la correspondiente λ_m .

V. CONCLUSIONES

Se pudo observar experimentalmente enganche de fase para separaciones mucho mayores que para la interacción espectral. Esto estaría indicando que el efecto de acoplamiento de fase es un fenómeno mucho más sensible a la interacción.

Se obtuvo un modelo teórico simple para describir el corrimiento de frecuencia. Es notable que este modelo, que supone estado estacionario, reproduzca tan bien los resultados experimentales, pues se sabe desde hace tiempo que los colorantes poseen una importante dinámica espectro-temporal⁽⁵⁾, que hace a priori inconsistente dicha suposición. Puede concluirse que, en el promedio temporal, esta suposición se hace aceptable para obtener el valor de los corrimientos a primer orden. Es de hacer notar que se busca contar con la descripción más sencilla posible del comportamiento no lineal de un solo modo, ya que ésta se debe usar luego para la modelización de la formación de estructuras en un campo de osciladores no lineales.

Se concluye que una descripción de la formación de estructuras en láseres de colorante, basada en un campo de osciladores no lineales (Ginzburg-Landau), deberá suponer que éstos son *soft oscillators*, es decir, osciladores cuya frecuencia disminuye al aumentar la intensidad del campo. Esta es una novedad interesante, pues la deducción teórica de formación de estructuras en láseres indicaba que éstos debían comportarse como *hard oscillators* dado el signo de la desintonía entre la frecuencia del láser y la frecuencia central de la curva de ganancia⁽⁶⁾.

APENDICE: RUPTURA DE LA APROXIMACIÓN DE ABERTURA GAUSSIANA PARA LA GANANCIA

En un pasaje por el medio amplificador, el campo va a experimentar una ganancia de $G \sim \exp(\sigma_c \Delta N L)$, donde ΔN representa la inversión de población y L es la longitud del medio. Como ΔN es proporcional a la intensidad de bombeo, tenemos que $\Delta N \sim \Lambda \exp(-r^2/\omega^2)$ para un bombeo de distribución gaussiana con radio ω . Reemplazando esto en la expresión de la ganancia, se puede obtener la función de transmisión (T) que la ganancia le impone al campo.

$$T(r) \sim G(r) \sim \exp(\sigma_c \Lambda L \exp(-r^2/\omega^2)) \quad (A.1)$$

Esto es, una función supergaussiana, que es matemáticamente difícil de manipular. Si expandimos la segunda exponencial a primer orden ($\exp(-r^2/\omega^2) \approx 1 - r^2/\omega^2$), obtenemos la aproximación gaussiana. Es decir, una función de transmisión gaussiana que, como es de notar, depende explícitamente de la ganancia en el eje (G_0).

$$T_{\text{Gauss}} \sim G_0 \exp(-r^2 \ln G_0 / \omega^2) \equiv G_0 \exp(-r^2 / \omega_{\text{eq}}^2) \quad (\text{A.2})$$

De la referencia⁽⁷⁾, se obtiene la condición de validez para la aproximación de abertura gaussiana, a una función de transmisión arbitraria. Esto es,

$$\left| \frac{ar^2}{2} \right| \ll 1 \quad (\text{A.3})$$

donde

$$a = - \frac{1}{T_0} \frac{d^2 T}{dr^2} \Big|_{r=0} \quad (\text{A.4})$$

Reemplazando (A.1) en ésta se obtiene:

$$\left| \frac{r^2}{\omega_{\text{eq}}^2} \right| \ll 1 \quad (\text{A.5})$$

Para que la mayor parte de la energía del modo cumpla tal condición, tomamos $r = \omega$, donde ω representa el radio del modo de la cavidad, implicando que ahora la condición es sobre el 71% de la energía del modo. Usando la expresión de ω en función de la abertura (ω_{eq}),

calculada con el método usual de propagación matricial, uno puede obtener el diámetro mínimo para la zona excitada (D_M) para que la aproximación sea buena. El valor que se obtiene pidiendo que la expresión (A.5) sea igual a 0,2 (como valor límite de validez) es $D_M = 0.8 \text{ mm}$. Este es, precisamente, el punto a partir del cual la curva teórica deja de ajustar a los datos experimentales (ver fig. 5).

AGRADECIMIENTOS

Este trabajo se realizó con el apoyo del contrato CII*-C193-0331 "Spatio temporal dynamics on lasers" de la Comisión de las Comunidades Europeas.

REFERENCIAS

- 1 - M. Golubitsky, I. Stewart and D. Schaeffer, *Singularities and Groups in Bifurcation Theory*, Vol. II, Applied Mathematical Sciences 69 (Springer-Verlag, New York, 1988).
- 2 - S. G. Chuartzman, D. Krigier and A. A. Hnilo, *Opt. Commun.* 121, 1 (1995).
- 3 - A.A. Hnilo, O. E. Martínez y E.J. Quel, *IEEE J. Quantum Electron.* Vol. QE-22, No. 1, pag. 20 (1986).
- 4 - S. P. Schafer, *Dye Lasers* (Springer-Verlag, New York, 1977).
- 5 - Y. H. Meyer and P. Flamant, *Opt. Commun.* 19, 20 (1976).
- 6 - "Theoretical problems in cavity nonlinear optics", P. Mandel, Cap. 12, Cambridge University Press (1997).
- 7 - A. E. Siegman, *Lasers* (University Science Books, Mill Valley, 1986).