

一种准分子激光泵浦的 微微秒染料激光脉冲放大器*

李文冲

F. P. Schäfer

(中山大学物理系) (西德马-普学会, 生物物理化学研究所)

提要: 本文叙述一种在一个泵浦周期内讯号脉冲三次通过染料池的微微秒激光脉冲放大器, 它有效地利用泵浦能量, 可以得到 4×10^4 的高增益, 低的放大自发荧光以及没有脉冲变宽, 并且结构简单, 工作稳定。用四能级分子模型, 以及作速率方程的数值解, 对放大器的特性做了计算机模拟。计算与实验结果相符。

An excimer laser pumped ps dye laser amplifier

Li Wenchong

(Physics Department, Zhongshan University)

F. P. Schäfer

(Max-Planck-Institut für Biophysikalische Chemie, Abteilung Laserphysik, Göttingen, FRG)

Abstract: An excimer laser pumped ps dye amplifier system is described, in which the signal passes for three times during one pumping duration. Using efficiently the pumping energy, this amplifier exhibits a high gain of 4×10^4 , low pulse ASE of less than 1% and no pulse broadening. It is simple in structure and stable in operation. Computer simulation gives satisfactory agreement with the experimental results.

一、引言

微微秒激光脉冲放大器是近年来十分重视的课题。A. Migus 等^[1]、T. L. Koch 等^[2]曾报道了以 Q 开关 $\text{Nd}^{3+}:\text{YAG}$ 为放大器的泵浦光源, 多级微微秒放大系统; Zr. Bor 等^[3]报道了氮分子激光器为泵浦源的三级微微秒放大器。在这些文献中, 微微秒脉冲

信号在每一个泵浦脉冲时间内只有一次通过染料增益介质, 为了取得较大的输出能量, 放大系统往往采用多级串联式结构。最近我们研究了一种用准分子激光器作为泵浦光源的微微秒脉冲染料放大器, 只采用一个染料池, 在一个泵浦脉冲作用时间内, 微微秒信号三

收稿日期: 1983 年 10 月 5 日。

* 本文是李文冲在西德马-普生物物理化学研究所访问期间完成, 并曾在 83' 国际激光会议(广州)宣读。

次通过染料增益介质, 获得三次放大。与单次通过、三级串联的放大器比较, 在能量利用效率和对放大自发荧光(ASE)的抑制方面, 这里介绍的方法更为优越。

二、实验装置和实验结果

实验装置如图 1。XeCl 准分子激光的脉宽为 15~20 毫微秒, 能量为 200 毫焦耳/脉冲, 所用的染料池为 Bethune 型棱镜式染料池^[4]。具有水平偏振方向的微微秒脉冲信号经由反射棱镜 P_1 进入染料池获得第一次放大, 光束通过偏振分束器 PO 以大约 0.2 度的角度由 M_1 反射折回, 当它第二次通过染料池获得放大之后, 经由光楔 P_2 进入 45° 转偏器 FR , 再由 M_2 反射折回。由于光束两次经过 FR , 它的偏振电矢量转了 90°, 经过第三次放大之后, 光束被偏振分束器反射输出。为了抑制 ASE 和保持信号的脉宽不变, 在装置中放入了两个可饱和和吸收染料池(图 1)。

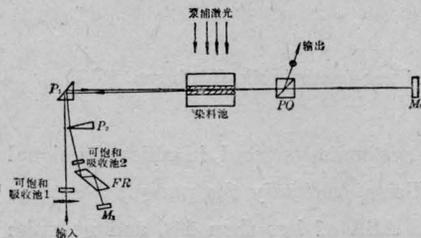


图 1 多次放大器实验装置图

P_1 —全反棱镜; P_2 —光楔; M_1 、 M_2 —反射镜;
 PO —偏振分束器; FR —费斯涅转偏器; 可饱和
 吸收池 1—孔雀绿 $1 \times 10^{-5} M/l$; 可饱和吸收池
 2—DODCI, $1 \times 10^{-5} M/l$

输入信号相对于泵浦脉冲的注入时间 t_{in} 可以通过泵浦光路中的光学延迟线加以调整。第一次放大和第二次放大的延迟时间 ΔT_1 , 第二次和第三次放大的延迟时间 ΔT_2 可以通过改变染料池与 M_1 及 M_2 的距离分别加以调整, 它们之间的关系如图 2 所示。由于在我们的实验系统中振荡器和放大器共用一个准分子激光器泵浦源, 因此输入脉冲信

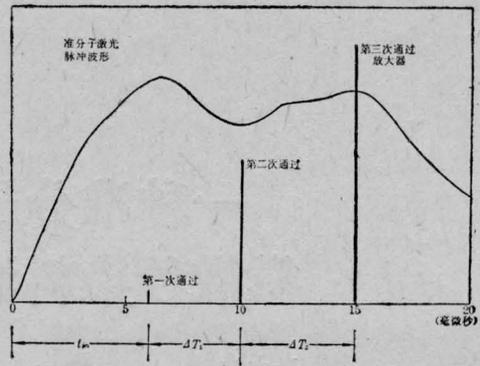


图 2 三次放大与泵浦脉冲的时间关系

号与放大器的泵浦脉冲之间的抖动小于 0.5 毫微秒。

当泵浦脉冲到达之后, 必须等待一段时间, 直到染料增益介质中分子反转数足够大, 才让信号第一次通过染料池, 这样可以得到尽可能高的增益。由于讯号放大过程必然消耗了一部分反转粒子数, 因此要有一段恢复过程才能作第二次放大, 对第三次放大也是这样。恢复时间约需一个荧光寿命的时间(详见下面讨论), 对 Rh6G 为 5 毫微秒, 因此在 20 毫微秒泵浦时间内安排三次通过而又有适当恢复时间是可能的。为了获得最大的增益, 我们曾经系统地改变 t_{in} 、 ΔT_1 和 ΔT_2 , 实验结果如图 3。脉冲讯号的增益是通过在每一次放大之后适当的位置上把光束反射出来, 用快速光电二极管(时间响应为 200 微微秒), 一组经校正的滤光片和 Tekronix 7104 1 千兆赫示波器进行测量。

图 3(a) 中, 测量值 a_1 、 a_2 和 a_3 为信号经过第一次、第二次和第三次放大的光强, 这里

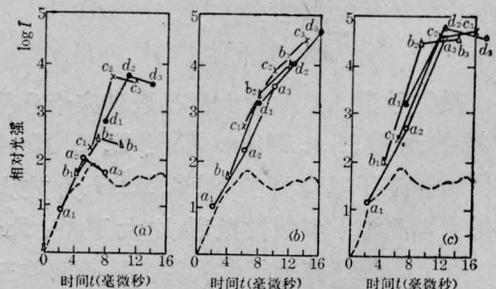


图 3 改变注入时间及延迟时间的系统实验结果

$t_{in}=2$ 毫微秒, $\Delta T_1=\Delta T_2=3$ 毫微秒; b_1 、 b_2 和 b_3 重复上述测量, 但 $t_{in}=4$ 毫微秒; c_1 、 c_2 和 c_3 对应于 $t_{in}=6$ 毫微秒; d_1 、 d_2 和 d_3 为 $t_{in}=8$ 毫微秒。图 3(b) 的实验与 (a) 的条件相同, 只是改变了 $\Delta T_1=\Delta T_2=4$ 毫微秒, 图 3(c) 为 $\Delta T_1=\Delta T_2=5$ 毫微秒。从图 3(a) 可以看到第三次的光强比第二次为弱, 表明在 $\Delta T=3$ 毫微秒时间内, 染料介质的反转粒子数未获得充分恢复, 而实验系统的光学元件损耗使得光强下降。在图 3(b) 的条件下, 信号经每一次放大, 光强都增加, 除了在 $t_{in}=8$ 毫微秒条件之外, 总的放大倍数还不如 $\Delta T=5$ 毫微秒时高, 但是在 $t_{in}=8$ 毫微秒的时候, ASE 的成份增加, 这点下面将作讨论。在图 3(c) 的条件下, 信号经过第二次放大已相当高, 第三次放大已进入饱和, 这将会导致脉冲变宽。为了克服饱和现象和抑制耦合到第三次放大的 ASE, 我们在光路中放置了第二个可饱和吸收池, 如图 1 所示。通过上述系统实验, 我们选定的工作条件如下: $t_{in}=6$ 毫微秒, $\Delta T_1=4$ 毫微秒, $\Delta T_2=5$ 毫微秒。放大器的增益如表 1。用二次谐波非共线相关函数测量法对每一次放大前后的脉宽作了测量, 表明脉冲没有变宽。

表 1

泵浦能量(毫焦耳)	100	100
输入脉冲能量(毫微焦耳)	40	25
输出脉冲能量(毫焦耳)	1.5	1
总放大倍数	4×10^4	4×10^4
脉冲对脉冲稳定性	$\pm 8\%$	$\pm 10\%$
脉冲宽度(微微秒)	100	10

三、放大自发荧光(ASE)的抑制

对许多种应用来说, 抑制 ASE 十分重要。在长脉冲泵浦、单次通过的放大器中, 抑制 ASE 常常遇到困难, 因为被放大的信号脉

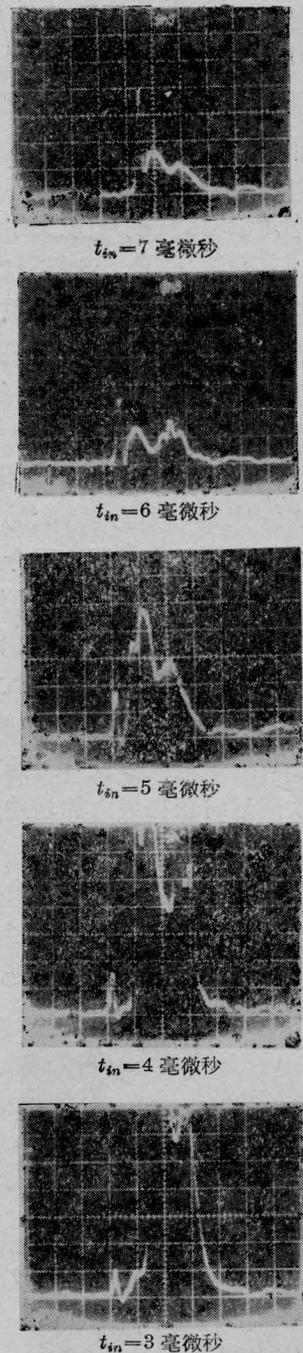


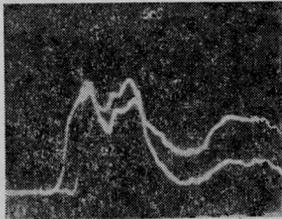
图 4 不同注入时间 t_{in} 对信号与 ASE 之比的影响

宽远比泵浦光窄。在信号通过之后的一段时间内, 泵浦能量就转化为自发荧光和放大自发荧光。在我们的情况下, 每一个泵浦作用时间内, 信号三次通过染料池, 大部分泵浦能

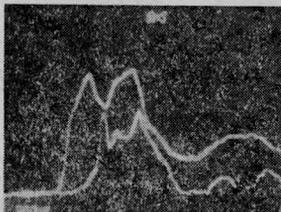
量用于讯号放大,被转化为自发荧光与 ASE 的能量就减少。除此之外,如果适当选择注入时间 t_{in} 和增加第二次和第三次通过的耦合距离,也在一定程度上抑制 ASE。

图 4 为经过第一次放大之后的一组示波图形,图中可以看到一个被放大的微微秒脉冲以及尾随其后的 ASE。这组图表明,推迟注入时间 t_{in} ,可以得到较高的增益,同时得到较高的信号与 ASE 之比。但是当 $t_{in}=7$ 毫微秒的时候,讯号与 ASE 重迭,使得 ASE 作为背景有所增加。为了弄清楚这一现象,我们测量了离轴自发荧光辐射(图 5(a))和同轴放大自发荧光(ASE)(图 5(b))。众所周知,自发荧光辐射光强正比于介质的反转粒子数,因而它也反映了放大器的增益。图 5(a) 表明自发荧光比泵浦脉冲前沿落后 2.5 毫微秒,而其峰值在 5~6 毫微秒之间,而 ASE 却落后 7 毫微秒。从这个实验可以看到,如果令 $t_{in}=5$ 毫微秒或 6 毫微秒,就可以在第一次通过时获得最大的增益,最低的 ASE。

在第二次放大时,ASE 已经发生,作为背景,它必然被耦合到第三次通过而被再放大,这个耦合系数如图 6 所示。图中 g 为立



(a) 离轴自发荧光(下面的曲线)和准分子激光脉冲形状(上面的曲线)



(b) 同轴 ASE(下面的曲线)和准分子激光脉冲形状(上面的曲线)

图 5

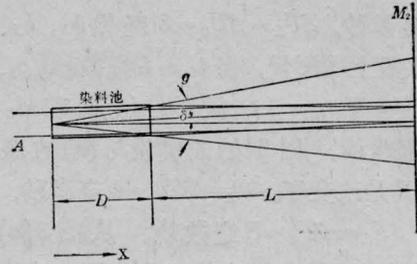


图 6 ASE 辐射角与耦合角的几何关系

体角,在这之内有 ASE 辐射, δ 为立体角的一部分,在这之内 ASE 被 M_2 反射折回,重新进入染料池,因此耦合系数为 $c=\delta/g$ 。在我们的条件下, $D=3.5$ 厘米, $L=75$ 厘米, $C=5.2 \times 10^{-4}$, 这个值非常小。

在我们的系统中,经测定 ASE 的成份 $<1\%$ 。

四、理论分析

A. 计算模型

文献[1~3]中,在研究放大器特性时,由于被放大的微微秒脉冲远短于泵浦脉宽(5~10 毫微秒),人们可以在染料介质到达稳态平衡之后才让微微秒信号通过染料池,因此为计算方便,大多假设泵浦光为一染料脉冲。另外由于信号只是一次通过染料池,在泵浦后期影响较大的单重态到三重态过渡($S_1 \rightarrow T_1$)可以忽略。这样就可以用简化二能级模型、稳态解的方法对放大器作理论分析。

在我们的系统里,在一次泵浦时间内,信号三次通过染料池,上述假设就不能成立。首先,在一个泵浦过程中,染料介质的放大增益将随泵浦脉冲的波形(即光强)而变化,而信号所获得的增益将取决于它通过介质那一瞬间的值;第二,介质中粒子反转数经过一次放大之后将消耗了一部分,它需要一段恢复时间才能保证在下次信号通过时获得最大的增益;第三,由于泵浦脉宽为 15~20 毫微秒, $S_1 \rightarrow T_1$ 过渡所引起的能量损失将会一定程度上影响泵浦后期的增益。根据以上三点,我们从染料分子四能级模型(图 7)出发,着

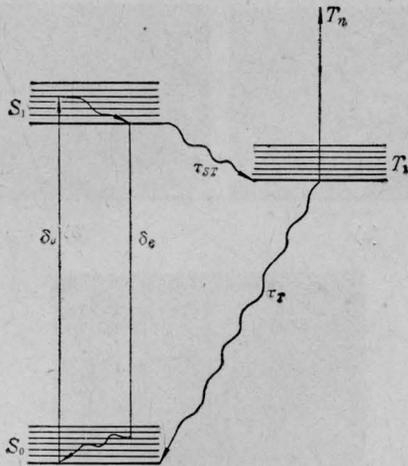


图7 四能级染料分子模型

重考虑下述四个基本过程:

- (1) 从 S_0 到 S_1 的激发过程;
- (2) 从 S_1 到 S_0 的荧光辐射过程;
- (3) 单重态 S_1 到三重态 T_1 的过渡;
- (4) 三重态吸收, T_1 到 T_n 的跃迁。

系统的速率方程为:

$$\frac{\partial \varphi_1}{\partial t} + V_g \frac{\partial \varphi_1}{\partial z} = V_g (\sigma_1^e N_1 - \sigma_1^a N_0) \varphi_1 \quad (1)$$

$$\frac{\partial \varphi_2}{\partial t} + V_g \frac{\partial \varphi_2}{\partial z} = V_g (\sigma_2^e N_1 - \sigma_2^a N_0) \varphi_2 \quad (2)$$

$$\frac{\partial N_0}{\partial t} = V_g (\sigma_1^e \varphi_1 + \sigma_2^e \varphi_2) N_1 - V_g (\sigma_1^a \varphi_1 + \sigma_2^a \varphi_2) N_0 + \frac{N_1}{\tau} \quad (3)$$

$$\frac{\partial N_T}{\partial t} = \frac{N_1}{\tau_{ST}} - \frac{N_T}{\tau_T} \quad (4)$$

$$N = N_0 + N_1 + N_T \quad (5)$$

式中 z 为光脉冲传播方向, N_0 、 N_1 和 N_T 分别对应于 S_0 、 S_1 和 T_1 的粒子数, φ_1 和 φ_2 分别为泵浦光及输入信号的光子密度, V_g 为光脉冲在染料溶剂中的群速度, σ_1^e 和 σ_1^a 为染料分子在泵浦波长的发射与吸收截面, σ_2^e 和 σ_2^a 为染料分子在信号波长的发射与吸收截面, σ_T 为三重态跃迁的吸收截面, τ 为第一单重激发态 S_1 的荧光寿命, τ_{ST} 为 $S_1 \rightarrow T_1$ 的弛豫时间, τ_T 为 $T_1 \rightarrow S_0$ 的弛豫时间。

表 2

染料介质参数		染料放大器参数	
Rh6G 染料		染料池尺寸	
τ	5 毫微秒	长 L	3.5 厘米
n (甲醇)	1.33	直径 D	0.35 厘米
σ_{590}^e	0.8×10^{-16} / 厘米 ²	λ_p	308 毫微米
σ_{590}^a	0.7×10^{-17} / 厘米 ²	σ_{308}^a	4.1×10^{-17} 厘米 ²
$K_{ST} = \tau_{ST}^{-1}$	2×10^7 秒 ⁻¹	N	7.6×10^{-4} M/l
	($\tau_{ST} = 50$ 毫微秒)		$(4.58 \times 10^{17}$ 分子/厘米 ³)
τ_T	250 毫微秒	泵浦能量	100 毫焦耳
σ_T	5.5×10^{-17} 厘米 ²	泵浦周期	20 毫微秒
ϕ	0.9		

下面的讨论将从上述基本方程及其数值解出发。在计算中所采用的染料分子特性参数及放大器参数列在表 2[参考[5]]。

尽管(1)到(5)式是非线性偏微分方程组,但它可以在整个染料池空间积分,得到放大系统的增益 G 对时间的微分方程如下:

$$\begin{aligned} \frac{dG}{dt} = & V_g (\sigma_2^e + \sigma_2^a) G [\varphi_1(t) \\ & - \varphi_2(t) (G-1)] \\ & \times [1 - e^{-\kappa NL} G^\gamma R^{-[\gamma + \frac{\kappa}{\sigma_T}]}] \\ & - \left[\frac{1}{\tau} + \frac{1}{\tau_{ST}} \left(\frac{\sigma_T + \sigma_2^e}{\sigma_2^e + \sigma_2^a} \right) \right] \\ & \times G \left(\ln G + \sigma_2^e NL + \frac{\sigma_T - \sigma_2^a}{\sigma_T} \ln R \right) \end{aligned} \quad (6)$$

$$\begin{aligned} \frac{dR}{dt} = & \frac{R}{\tau_{ST} (\sigma_2^e + \sigma_2^a)} \\ & \times [\sigma_T \ln G + (\sigma_T - \sigma_2^e) \ln R \\ & + \sigma_T \sigma_2^e NL] \end{aligned} \quad (7)$$

式中

$$\kappa = \frac{\sigma_2^e \sigma_1^e + \sigma_2^a \sigma_1^a}{\sigma_2^e + \sigma_2^a}$$

$$\gamma = \frac{\sigma_1^e + \sigma_1^a}{\sigma_2^e + \sigma_2^a}$$

式中 G 为增益,在无输入讯号情况下,对(6)、(7)式积分可以得到放大器的小讯号增益 G_0 , R 为单重态到三重态跃迁的损耗因子。

B. 瞬态行为

图 8 为计算机模拟三次放大的增益变化瞬态行为。在(6)式中作为泵浦脉冲的光强

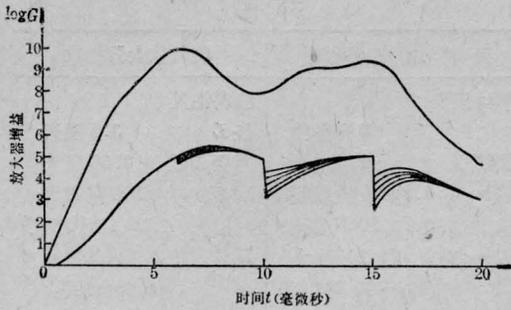


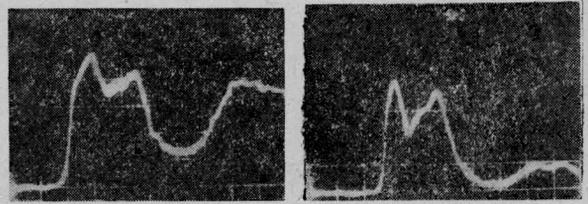
图8 计算机模拟三次放大的瞬态行为

波形 $\varphi_1(t)$ (图8中上边的曲线) 为实测的示波图形。用勒尚德函数逼近法求得模拟函数, 输入信号 $\varphi_2(t)$ 为一个脉宽 = 100 微微秒, 能量为 25 毫微焦耳、50 毫微焦耳、100 毫微焦耳、200 毫微焦耳和 400 毫微焦耳矩形脉冲, 对(6)和(7)式作数值积分, 求得染料介质中 G 随时间的变化。从图中可以看到当信号通过介质时, 反转粒子数被消耗, 导致放大增益急剧下降。然后经过恢复, 接着第二次和第三次放大, 重复上述过程。但是随着信号增大, 对粒子数的消耗更多, 因而 G 曲线显著下降。从曲线看到恢复时间为 4~5 毫微秒, 这正是 Rh6G 的荧光寿命 τ 的值。

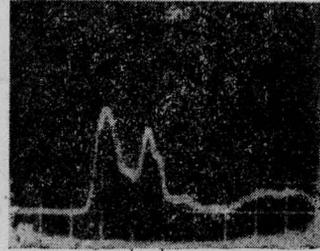
为了对这一计算结果与实验对比, 我们用示波器观察放大器的离轴自发荧光。图9(b)和(c)分别为没有输入信号和有输入信号的情况下离轴自发荧光辐射, 从图中可以清楚地看到当信号每次通过染料介质时, 光强迅速下降以及它的恢复过程, 实验和计算很好地符合。

C. 放大增益

在计算放大器的增益时, 由于信号远短于泵浦脉冲, 可以假设在信号通过染料介质时泵浦条件不变。这样我们可以令 $\varphi_2(t) = 0$, 从(6)、(7)式求得小信号增益 $G_0(t)$, 对应于信号第一、二、三次通过染料介质时, 分别得到 $G_0(t_1)$ 、 $G_0(t_2)$ 和 $G_0(t_3)$ 的值。对于每一次放大过程, 还必须考虑到实际增益 K 与输入信号的强弱的关系, 特别是在较大的信号时, 这种修正更为重要。它可由下式求得^[3, 6]:



(a) (b)



(c)

图9

(a) 准分子激光脉冲形状; (b) 无输入信号时的离轴自发荧光; (c) 有输入信号时的离轴自发荧光。三个箭头指示三次通过的工作点

$$K = \frac{1}{b} \ln [1 + G_0(e^b - 1)] \quad (8)$$

$$b = \frac{E_s(\sigma_2^e + \sigma_2^a)}{A h \nu_s} \quad (9)$$

K 为实际增益, G_0 为小信号增益, b 为归一化总输入光子数, E_s 为信号脉冲能量, ν_s 为信号频率, h 为普朗克常数, A 为染料池截面积。引用上边计算中使用的参数, 从(8)、(9)式可以计算出 E_s 与 K 的关系, G_0 为曲线组的参数。从图10曲线组, 根据输入信号能量以及光束通过各光学元件的损失, 可以计算每一次放大的实际增益和输出能量, 图中各点为实验值, 实验与计算基本相符。

D. 泵浦能量利用效率、泵浦功率与抑制超辐射

微微秒脉冲染料放大器的泵浦能量利用效率主要与下列三个因素有关: (1) 染料分子的量子产额; (2) 染料介质的储能特性以及信号注入时间 t_{in} ; (3) 自发荧光辐射及放大自发荧光辐射损失与泵浦速率的关系。第一个因素与染料分子的基本物理参数如 σ^e 、 σ^a 、 τ

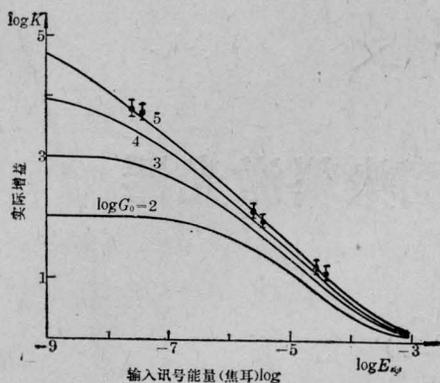


图10 实际增益 K 与输入信号能量 E_{stg} 的关系

等有关, 这里不作详细讨论。第二因素为储能特性, 对于泵浦脉宽小于 10 毫微秒的情况, t_{in} 往往选定在增益 $G_0(t)$ 的最大值的位置, 因此只能利用它的前半部能量 ($\leq 50\%$), 后半部的泵浦能量将转化为自发荧光及 ASE。在准分子激光泵浦情况下, 脉宽为 15~20 毫微秒, 波形有一段持续平稳曲线, 如果只作一次通过放大, t_{in} 选定在第一个峰值所在的地方, 则只有 27% 时间的能量被利用, 如果三次通过, 则为 87%。

自发荧光, 特别是 ASE 的辐射损失是染料放大器存在的一个重要问题, 它与放大器的泵浦速率有关。U. Ganid 等^[6] 曾作过较详尽的分析; 他们认为在弱泵浦条件下, 自发荧光辐射损失占优势, 在强泵浦条件下 ASE 损失占优势, 而 ASE 的光子流密度 $\psi(z)$ 可由下式表述:

$$\psi^\pm(z) = I^\pm(z) + \frac{g^\pm}{\sigma^0 \tau} \quad (10)$$

式中 $I^\pm(z)$ 为对应于光束前进和后向的自发荧光辐射光强, g 为几何因素, 对于柱形激活区来说 $g^\pm = D/L^2$, 把(10)代入(6)式, 用计算机作数值积分可以得到 $\log G_0$ 与泵浦速率 W 的关系如图 11。从曲线可以看到在弱泵浦区, 增益很低, 随着泵浦速率的增加, W 从 10^6 到 10^7 秒⁻¹, 增益随 W 的增加指数上升, 增长了四个数量级。继续加大 W 值, ASE 损失增加, 导致增益饱和, 对应于 W 为 10^7

到 10^8 秒⁻¹, 放大器的增益只增加了一个数量级。能量利用效率 η (定义为输出能量与泵浦能量之比) 与 W 的关系如图 11 中的虚线所示。由图中可以看到, 只有在适中的泵浦速率条件下, 可以得到最大的效率 η 、尽可能高的增益和较低的 ASE。图中箭头标出我们放大器选定的泵浦条件。

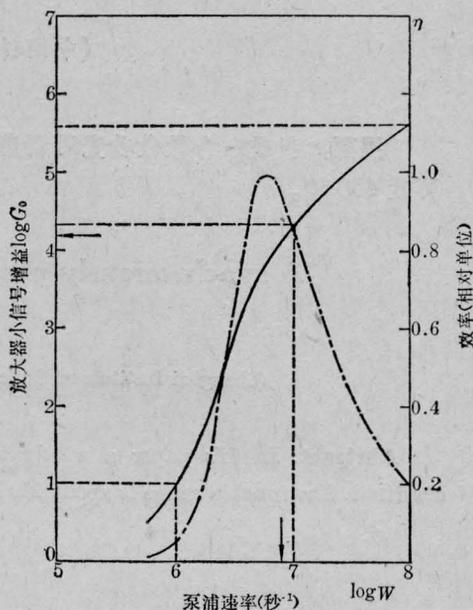


图 11 放大器增益、效率与泵浦速率的关系

作者对 A. Müller 教授在工作过程中给予的有益讨论表示感谢, 本文大部分计算是在西德哥廷根市(Göttingen)计算中心完成, 在计算过程中任培善博士曾给予许多有益的建议和讨论, 特此致谢。

参 考 文 献

- [1] A. Migus *et al.*; *IEEE J. Quant. Electr.*, 1982, **QE-18**, No. 1, 101.
- [2] T. L. Koch *et al.*; *Opt. Commun.*, 1982, **40**, 364.
- [3] Zs. Bor *et al.*; *Sov. J Quant. Electr.*, 1982, **12**, No. 8, 1050.
- [4] D. S. Bethune; *Appl. Opt.*, 1981, **20**, 1897.
- [5] F. P. Schäfer (Ed.); *Dye Laser*, 2nd Ed., Topics in Applied Physics, Vol. 1, Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, New York, 1977, p. 58.
- [6] U. Ganiel *et al.*; *IEEE J. Quant. Electr.*, 1975, **QE-11**, No. 11, 881.