

亚毫微秒脉冲染料激光器的瞬态过程的研究

陈文驹 林世雄 张桂兰 林美荣
(南开大学物理系)

提 要

本文报导一种 N_2 激光器泵浦的亚毫微秒弛豫振荡脉冲染料激光器。用实验观测了其弛豫振荡及亚毫微秒脉冲的形成过程,并根据振荡的瞬态过程不同阶段,采取分别求速率方程近似解的方法,对其工作过程进行了理论分析。将有关参量和实验测量值代入这些解,所估算的脉冲宽度数量级与实验显示值能较好地相符合。

一、前 言

近几年来,氮分子激光泵浦的亚毫微秒脉冲染料激光器,开始引起人们的注意^[1~3]。它装置简单,无须采用复杂的实验装置就可获得 $10^{-10} \sim 10^{-11}$ 秒量级宽度的激光脉冲,波长选择范围可从近紫外到近红外光谱区。

这种激光器工作在不稳定的起始弛豫振荡状态。为分析其工作过程, Lin^[3]曾使用计算机求其速率方程组的初始瞬态过程的解,所得结果虽然与实验结果相符合,但计算机求解得不到其解析式,不能清楚地阐述弛豫振荡过程的物理图象。采用微扰法^[3]求速率方程组的近似解,则只能定性地说明弛豫振荡的存在,与实验结果相差较大。我们用实验方法观测了通过适当控制泵浦功率来产生弛豫振荡和获得亚毫微秒脉冲的过程,并试图采用对其振荡过程的不同阶段分别求解的方法来研究其工作过程。这样,对其物理图象的描述比较清楚。将实验中测得的亚毫微秒单脉冲时的泵浦功率和脉冲后沿时间代入上述分阶段解来估算脉冲宽度,并与实验显示的脉冲进行比较,两者能较好地相符合。

二、实验装置

图1是获得亚毫微秒脉冲染料激光的实验装置示意图。用脉冲 N_2 激光泵浦石英池 A 中的染料溶液,可以获得染料激光。池 A 的 α_1 面镀铝膜作全反射镜, α_2 面不镀膜,作为输出镜。 α_1 面与 α_2 面平行,间距 1 厘米,形成谐振腔。通过调节分束器 S 的位置及可调减光板 T,适当控制照射到 A 池的 N_2 激光束的能量小于某一定值时,就可以从 A 池获得亚毫微秒脉冲的染料激光输出。

实验所用 N_2 激光器的单个脉冲能量为 0.8 mJ, 脉冲宽度为 4 ns, 激光染料为 $5 \times 10^{-3} \text{ mol} \cdot \text{l}^{-1}$ 的若丹明 6G 乙醇溶液。当控制照射到 A 池的 N_2 激光束脉冲的能量为 28 μJ 时,从 A 池可获得单个脉冲能量约为 5 μJ 的亚毫微秒染料激光。用 N_2 激光束的其余能量

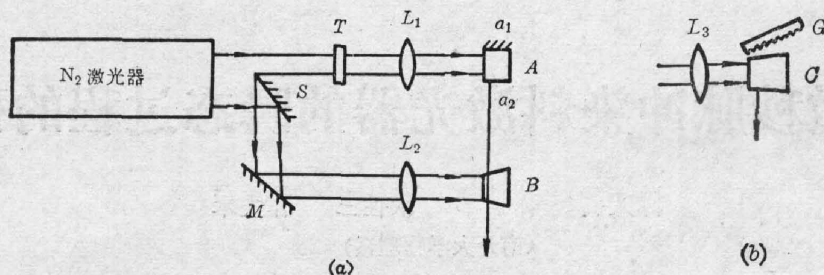


图1 亚毫微秒脉冲染料激光器装置示意图

Fig. 1 Schematic diagram of a subnanosecond pulse dye laser

作为染料激光放大级的泵浦光源,经 B 池放大后,染料激光脉冲的能量约为 $20 \mu\text{J}$ 。

图1(a)装置输出的激光谱线较宽,约为 10 nm ,但对于某些分子动力学过程的研究来说,仍是可用的。如果将图1(a)中染料池 A 改为图1(b)所示,用衍射光栅 G 作为调谐元件,腔长仍保持在 1 cm 左右,就可获得谱线宽度约为 1 nm 的可调谐亚毫微秒脉冲染料激光。

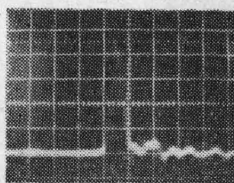
图2 染料激光脉冲。
(时标: 2 ns/div)Fig. 2 Observed dye laser pulse (time scale: 2 ns/div)

图2是用示波器观测到的染料激光脉冲波形。示波器的上升时间 t_{r1} 为 1 ns , 检测光电二极管 $2 \text{ CU } 4401-1$ 的上升时间 t_{r2} 为 1 ns , 所以系统的总上升时间为 $\sqrt{t_{r1}^2 + t_{r2}^2} = 1.4 \text{ ns}$ ^[4], 而图2所示脉冲上升时间为 0.66 ns 。由此可见,实际的脉冲上升时间远小于 1 ns , 显然脉冲是亚毫微秒数量级的,与1980年Walden等^[5]测得的这种激光脉冲的半宽度为 220 ps , 两者是相吻合的。

三、瞬态过程的观测

通常 N_2 激光泵浦获得的染料激光,其脉冲宽度为 n 个毫微秒。要获得宽度为亚毫微秒的激光脉冲,必须使染料激光器工作在初始的弛豫振荡状态。利用微扰法^[6]求速率方程组的近似解,可得产生振荡的充分必要条件为 $(r-1)/(\tau \cdot \tau_0) > (r/2\tau)^2$, 其中 $r = R/R_0$, $R_0 = 1/B\tau\tau_0$, τ 为染料分子单态第一激发态的荧光寿命, τ_0 为光子谐振腔寿命, R 为泵浦速率, B 为爱因斯坦系数, R_0 称为泵浦速率阈值。当 $r \gg 1$ 时,该充分必要条件可写为

$$r < 4(\tau/\tau_0) \quad (1)$$

如果谐振腔很短, $\tau_0 < \tau$, 只要适当减小泵浦光的功率,就可以满足(1)式条件而获得弛豫振荡。

图3为观测染料激光瞬态过程的实验装置示意图,图4为在示波器上观测到的不同泵浦功率所获得的染料激光的脉冲波形。当泵浦功率较大时,观察不到弛豫振荡,染料激光脉冲波形基本上近似于 N_2 激光的脉冲波形,如图4(b)所示。当泵浦功率逐渐减弱,可明显地看到染料激

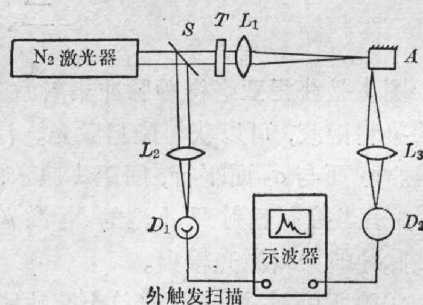
图3 研究染料激光瞬态过程的实验装置
 D_1 : 光电管 GD-10H ; D_2 : 光电二极管 $2 \text{ CU } 4401-1$

Fig. 3 Experimental apparatus for studies of dye laser transient process

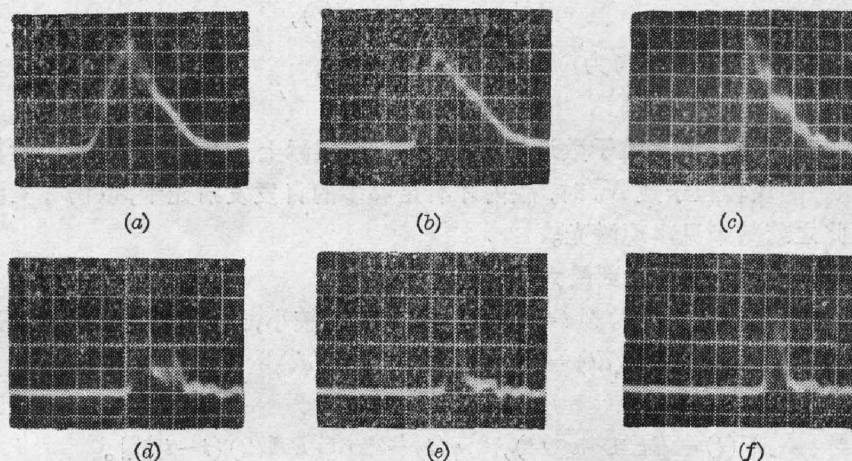


图 4 泵浦功率(从 *b* 至 *f*)减小时的染料激光脉冲的弛豫振荡和后延, 其中 *a* 为 N_2 激光脉冲。时标 2ns/div

Fig. 4 Relaxation oscillations and delays of the observed dye laser pulses as the pumping power is decreased from *b* to *f*, where *a* is N_2 laser pulse. Time scale: 2ns/div.

光的弛豫振荡。由于采用 N_2 激光对示波器进行外触发, 观察到染料激光的起始时刻随着泵浦功率的减小而后延。当泵浦功率减小到如图 4(e) 和 (f) 所示的情况时, 染料激光振荡第一个周期以后的振荡脉冲都落在 N_2 激光脉冲的后沿之后, 振荡不能维持, 于是可得到单个亚毫微秒脉冲输出。

四、弛豫振荡过程的分析

由于染料分子三重态的影响可以忽略不计^[5,6], 染料激光器的工作物质可认为是四能级系统。在单模运转时, 其速率方程组为^[5]

$$\frac{dN}{dt} = R - BNq - (N/\tau), \quad \frac{dq}{dt} = BNq - (q/\tau_0). \quad (2)$$

式中 N 为腔内粒子数反转的数目, q 为腔内模光子数, R 为泵浦速率, B 为爱因斯坦系数。为了求得其解析解, 将振荡过程分为几个不同阶段, 分别求其近似解。Dunsmuir^[7] 在讨论激光的弛豫振荡过程时, 对这个方法曾有述及。但他的报道没有给出整个振荡过程的解, 也未进行充分的讨论。今结合染料激光的情形, 给出全过程的分段近似解析解, 并将实验的有关参量和测量值代入这些解来估计脉冲宽度, 然后将所得结果与实验显示的脉冲进行比较。

为简单计, 设泵浦速率 R 为一阶梯函数,

$$R(t) = \begin{cases} 0 & (t < 0), \\ R & (t > 0). \end{cases} \quad (3)$$

根据染料激光弛豫过程的特点, 我们将整个过程分为若干阶段:

1. $0 < t < t_1$ (t_1 为染料开始产生激光的时刻)

泵浦光开始工作, 但反转粒子数较少, 不足以使染料产生激光, $q=0$, 这时速率方程为

$$\frac{dN}{dt} = R - (N/\tau). \quad (4)$$

设 R 为阶梯函数(4)时, 可得出解为

$$N(t) = R\tau(1 - e^{-t/\tau}), \quad (5)$$

当 $t < \tau$ 时, (6) 式可近似地写为

$$N(t) \doteq Rt_0. \quad (6)$$

可见在初始阶段, 反转粒子数近似于线性增加, 实际上, 只有当腔内的反转粒子数的数目远大于稳态的反转粒子数 N_0 时, 腔内才有足够多的自发发射光子, 以诱导受激跃迁而出现激光, 在此之前则未见出现激光。

2. $t_1 < t < t_2$ (t_2 为 N 达到最大值 N_m 的时刻)

取染料开始出现激光的时刻 $t = t_1$, 但这时 q 值还较小, 速率方程组可近似写为,

$$(dN/dt) = R - (N/\tau), \quad (dq/dt) = BNq. \quad (7)$$

求解得

$$N(t) = R\tau(1 - e^{-t/\tau}), \quad q(t) = \exp[(BR/2)(t - t_1)^2]. \quad (8)$$

在这一阶段, q 值的上升比较缓慢,

3. $t_3 < t < t_4$ (t_4 为 N 下降至阈值 N_0 的时刻)

$t > t_2$ 时, N 和 q 值都足够大, 这时速率方程组可近似写为,

$$\frac{dN}{dt} = -BNq, \quad \frac{dq}{dt} = BNq. \quad (9)$$

求解得

$$\left. \begin{aligned} N(t) &= \frac{N_m}{2} \left[1 - \tanh \frac{N_m B}{2} (t - t_3) \right], \\ q(t) &= \frac{N_m}{2} \left[1 + \tanh \frac{N_m B}{2} (t - t_3) \right], \end{aligned} \right\} \quad (10)$$

其中 $t = t_3$ 时, $N = q = (N_m/2)$, 由 (9) 式可知, $t > t_3$ 时, $(dN/dt) < 0$, 所以 $t = t_3$ 时, $N = N_m$ 为最大值, 而后 N 值开始下降。(9) 式的右式表明, $(dq/dt) > 0$, q 值仍然上升。取 $t = t_4$ 时, N 值下降至阈值 $N_0 = (1/B\tau_0)^{[5]}$, 而 $q = q_m$ 。由 (2) 式, 当 $N = N_0$, 应有 $(dq/dt) = 0$, 故 q_m 为 q 的最大值, 而后 q 值开始下降。 $(t_4 - t_2)$ 为激光脉冲的上升前沿时间:

$$t_4 - t_2 = \frac{2}{N_m B} \left[\tanh^{-1} \left(1 - \frac{2N_0}{N_m} \right) + \delta \right]. \quad (11)$$

4. $t_4 < t < t_5$ (t_5 为激光脉冲终止时刻)

$t > t_4$ 时, 腔内反转粒子数 N 值继续下降, $(dN/dt) < 0$, 虽然 q 值仍是很大, 但 $(dq/dt) < 0$, 这时, 速率方程组可写作

$$dN/dt = -BNq, \quad dq/dt = -(q/\tau_c). \quad (12)$$

求解得

$$N(t) = \frac{1}{B\tau_0} \exp \left[Bq_m \tau_c \cdot \exp \left(-\frac{t - t_4}{\tau_c} \right) \right], \quad q(t) = q_m \exp \left(-\frac{t - t_4}{\tau_c} \right). \quad (13)$$

这一阶段激光主要依靠腔内储存的光子维持, 而以指数形式衰减, 直到激光脉冲终止。

$t > t_5$ 时, 弛豫振荡的第一个周期终止; 但在泵浦光的作用下, N 又恢复上升, 重复上述各阶段的过程, 形成振荡的第二个周期。如此周而复始, 得到一系列的振荡脉冲。如果泵浦光源是脉冲的, 并使振荡的第二个周期落在泵浦光脉冲的后沿之后, 振荡就不再能维持, 于是可获得只有第一个周期的单个脉冲的染料激光(见图 4)。

在振荡过程的第二阶段中, (8) 式的 q 值较小, 可以忽略, 因此根据 (11) 和 (13) 式可得出光脉冲半最大强度的宽度为

$$\Delta = \frac{t_4 - t_2}{2} + 0.69 \tau_c = \frac{1}{N_m B} \left[\tanh^{-1} \left(1 - \frac{2N_0}{N_m} \right) + 5 \right] + 0.69 \tau_c. \quad (14)$$

在我们的实验中, 当泵浦光脉冲的能量为 $28 \mu\text{J}$ 时, 可获得若丹明 6G 染料激光的单脉冲, 开始出现激光的后延时间为 $t_1 = 4.7 \text{ ns}$ 。如果 R 取平均泵浦速率, 则

$$R = (\bar{W}/h\nu) \cdot A = 2.6 \times 10^{21} \text{ mol} \cdot \text{sec}^{-1}, \quad (15)$$

式中 $\bar{W} = 3.5 \text{ kW}$, 为泵浦光的平均功率。 $h\nu = 5.9 \times 10^{-19} \text{ J}$, 为 N_2 激光 337.1 nm 的光子能量。 A 为染料激活区吸收泵浦光能量的百分比, $A = 1 - 10^{-\epsilon cl}$, 其中 ϵ 为若丹明 6G 对 337.1 nm 波长的克分子消光系数, $\epsilon = 2.5 \times 10^3 \text{ mol} \cdot \text{l}^{-1} \cdot \text{cm}^{-1}$ 。 c 为染料溶液的克分子浓度, $c = 5 \times 10^{-3} \text{ mol} \cdot \text{l}^{-1}$, l 为染料激活区的直径, 取 $l = 0.02 \text{ cm}$, 则 $A = 0.44$ 。

$$B = \frac{1}{\tau P_m} = 1.73 \times 10^{-9},$$

式中 τ 为若丹明 6G 的荧光寿命, $\tau = 5.4 \times 10^{-9} \text{ sec}^{[8]}$, P_m 为荧光谱带对应的模数, $P_m = (8\pi\nu^2/c^3)\eta^3 \cdot (\Delta\nu) \cdot V$, 取荧光频率 $\nu = 5.4 \times 10^{14} \text{ sec}^{-1}$, 荧光带宽 $\Delta\nu = 5 \times 10^{13} \text{ sec}^{-1}$, 乙醇的折射率 $\eta = 1.36$, 染料激活区体积 $V = 3.14 \times 10^{-4} \text{ cm}^3$, c 为光速, 则 $P_m = 1.07 \times 10^{10}$ 。 $N_m \approx R\tau(1 - e^{-t_1/\tau}) \approx 8.17 \times 10^{19}$, $N_0 = 1/B\tau_c = 9.7 \times 10^{11}$, $\tau_c = 56 \times 10^{-12} \text{ sec}^{[8]}$ 。代入 (14) 式, 得出脉冲宽度为 $\Delta \approx 85 \text{ ps}$ 。

五、讨 论

(1) 染料产生激光的起始时刻 t_1 与泵浦光功率有关。由 (5) 式可知, 泵浦光功率愈小, t_1 愈大, 即染料激光的开始出现时间随泵浦光功率的减弱而后延。实验观察到了这种后延现象 (图 4)。因此, 有可能将泵浦光功率减弱到一定值时, 使弛豫振荡第二个周期及其后的脉冲落到泵浦光脉冲的后沿之后, 从而可获得单一的毫微秒脉冲染料激光输出。

(2) 显然, 泵浦光脉冲的宽度愈小, 愈有利于消除振荡第二周期及其后的脉冲序列。如果泵浦光脉冲较宽, 要获得单一脉冲的染料激光, 必须使 t_1 尽可能后延, 即必须减弱泵浦光功率。如果泵浦光脉冲较窄, 则 t_1 可以较小, 因此可用较大的泵浦功率, 从而获得较大的染料激光功率。故窄脉冲的泵浦光源较之宽脉冲的更为有利。Walden 等人的工作^[1], 所用 N_2 激光脉冲宽度为 10 ns , 峰值功率为 2 kW , 获得染料激光单一脉冲的能量为 $1.8 \mu\text{J}$ 。而我们的工作, N_2 激光脉冲宽度为 4 ns , 峰值功率可用 7 kW , 获得染料激光单一脉冲的能量为 $6 \mu\text{J}$, 效果比前者的好。这种染料激光器经过放大能得到更大的能量输出。

本工作是在沈寿春教授的指导下完成的, 关信安同志在实验中给予了很多帮助, 在此表示感谢。

参 考 文 献

- [1] G. L. Walden, J. D. Bradshaw *et al.*; *Appl. Spectrosc.*, 1980, **34**, No. 1 (Jan/Feb), 18.
- [2] C. Lin, C. V. Shank; *Appl. Phys. Lett.*, 1975, **26**, No. 7 (1 Apr), 389.
- [3] C. Lin; *IEEE J. Q. E.*, 1975, **QE-11**, No. 8 (Aug), 602.

- [4] J. 密尔曼 H. 塔伯;《脉冲与数字电路》, (科学出版社, 1963), 62.
[5] A. Yariv; *Quantum Electronics* 2nd Ed., (John Wiley & Sons Inc., 1975).
[6] F.P. Schafer; *Topic in Applied Physics, Vol. 1: Dye Laser*, (Springer-Verlag, 1973).
[7] R. Dunsmuir; *J. Electron. & Control*, 1961, **10**, No. 5 (May), 433.
[8] K. L. Kompa, S. D. Smith; *Laser Induced Process in Molecules*, (Springer-Verlag, 1979), 103.

Studies on the transient process of a subnanosecond pulse dye laser

CHEN WENJU LIN SHIXIONG ZHANG QUILAN AND LIN MEIRONG

(Department of Physics, Nankai University, Tianjin)

(Received 2 September 1982, revised 7 February 1983)

Abstract

A nitrogen laser pumped relaxation-oscillation-dye-laser with subnanosecond pulses is described in this paper. The formation processes of its relaxation oscillations and subnanosecond pulses have been observed. Approximate analytic solutions for the rate equations have been obtained in different stages of the initial transient process of the dye laser. The pulsewidth has been estimated by substituting the parameters and experimental values into the solutions, and the result agrees with that of the experiments within an order of magnitude.