

富勒烯抑制自由运转的 Nd:YAG 激光器中的自锁模

罗 挺 曾和平 赵继然 江敏华 孟志葱 茅 森 林福成
(中国科学院上海光学精密机械研究所, 上海 201800)

摘 要 研究了放在 Nd:YAG 激光腔内的含富勒烯样品对激光波形的影响。实验发现, 富勒烯的强非线性吸收可用于光滑纳秒范围的自锁模脉冲序列, 估计这是由于双光子吸收引起的。

关键词 富勒烯, 双光子吸收, 自锁模。

1 引 言

C_{60} 分子非线性光学性质的研究引起人们广泛的兴趣并取得令人瞩目的成果^[1~3], 前期的研究主要集中在二阶、三阶非线性极化率的测量^[4~6], 以及 C_{60} 掺入各种聚合物和染料的光限制效应的研究^[7, 8]。研究表明, C_{60} 分子具有极快的非线性光学响应, 比平面 π 电子共轭体系具有更强的三阶非线性, 且在较低光能量下实现反饱和吸收。本文首次将 C_{60} 样品置入 Nd:YAG 激光腔内, 研究 C_{60} 样品对激光波形的影响, 实验结果表明, C_{60} 分子能光滑自由振荡激光器内的自锁模波形。

2 实验与结果分析

2.1 实验装置与样品制备

实验装置如图 1 所示, 谐振腔由平面镜 M_1 和 M_2 组成, 其中 M_1 为全反镜, M_2 的透过率为 47%, S 为小孔, 其直径从 1~8 mm 内可调。Nd:YAG 激光器的输出波长为 1064 nm, 器件工作重复频率 1~10 Hz 可调, 激光器静态的最大输出能量约 500 mJ。

在实验中使用了三种不同形式的样品: (a) C_{60} 甲苯溶液, 其浓度为 $1.0 \times 10^{-3} M$, 样品池为石英比色池, 厚度为 2 mm。 (b) 掺 C_{60} 有机玻

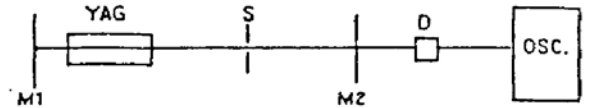


Fig. 1 The experimental setup. M_1 is a parallel mirror with reflectivity $R = 100\%$, M_2 is the output mirror ($T = 47\%$), S is an aperture. D is the photodiode

* 国家 863 高技术基金和国家自然科学基金部分资助项目。

收稿日期:1993年12月16日;收到修改稿日期:1994年1月19日

璃, 将 C_{60} 溶于甲苯中制成 C_{60} 溶液, 再与有机玻璃的三氯甲烷粘稠溶液混合, 经超声去气, 风干等过程之后注入玻璃模具中压成固体样品, 其厚度为 0.5 mm. (c) 掺 C_{60}/C_{70} 光学玻璃^[9], 把玻璃原料混合进 C_{60}/C_{70} 加热到 1200 K 约 1 小时, 然后以 10 K/h 的速度冷却, 必须注意避 C_{60}/C_{70} 在高温下的升华以及玻璃形成过程中的氧化, 经过抛光处理制成样品(厚度为 1 mm).

2.2 结果与分析

在激光器处于自由振荡状态时。用示波器观测激光器的输出波形(图 2 所示)为一系列强弱不一的脉冲, 每个脉冲的宽度约为 400 ns, 对其中某个脉冲进行观测, 发现其波形并不是平滑的, 存在由自锁模产生的脉冲序列, 每个自锁模脉冲的宽度大致为几个 ns, 这与激光器的等效腔长 $2l/c$ 是一致的, 如图 3 所示。从图中可看出, 这种自锁模是不完全的, 多次重复观测发现是不稳定的, 但总是存在的。把三种不同形式的样品分别放入激光腔中, 并观测它对激光波形的影响。实验发现, C_{60} 样品的加入将部分或完全抑制激光器中的自锁模, 抑制程度取决于样品中 C_{60} 的浓度和样品的厚度。图 4 为激光腔中加入 2 mm 厚的 C_{60} 甲苯溶液后的激光输出波形。从图 4 可看出, 这时的激光输出波形变得十分光滑, 表明相应的自锁模现象被完全抑制。在激光腔中加入掺 C_{60} 有机玻璃, 观测到与加 C_{60} 溶液相类似的结果。值得一提的是, 把掺 C_{60}/C_{70} 光学玻璃置于激光腔中并仔细调节输出镜, 观测到的波形如图 5 所示, 从图 5 可以看出, 这时自锁模的脉冲序列并没有完全消失。通过分析发现, 这是由于该样品中 C_{60} 的含量过低(0.01 wt%), 不能完全抑制自锁模现象。实际上, 这种自锁模现象的抑制

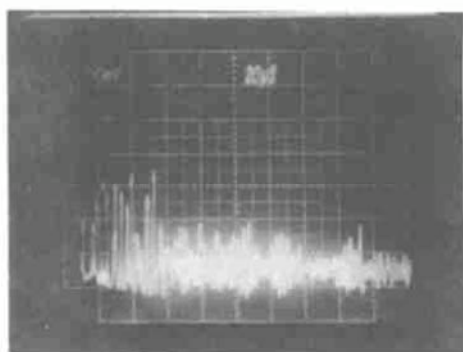


Fig. 2 Laser waveform from a free running Nd:YAG laser (time scale 20 μ s/div)

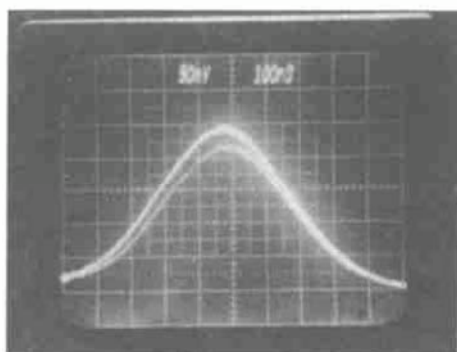


Fig. 3 Self mode-locking in one free running spike

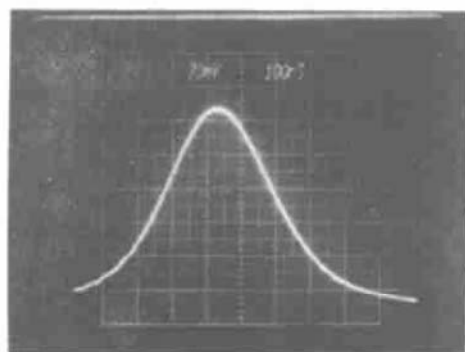


Fig. 4 Quenching of self mode-locking when C_{60} toluene solution is set in the Nd:YAG laser cavity

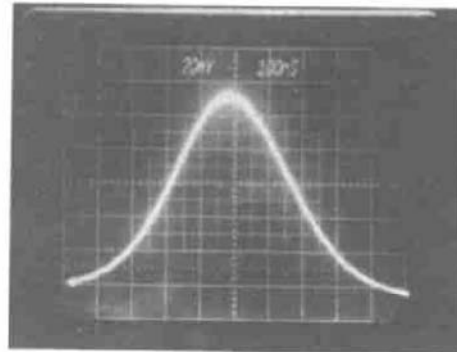


Fig. 5 Quenching of self mode-locking When C_{60} in polymethyl methacrylate is set in Nd:YAG laser cavity

与加入腔内样品中含 C_{60} 的浓度, 以及样品的长度有很大关系。以 C_{60} 溶液样品为例, 浓度过高或样品太厚将使腔内损耗过大, 浓度太低或样品太薄抑制效果较差。通过反复实验比较, 在本文所用的激光器中, 使用浓度为 $1.0 \times 10^{-3} M$, 厚度为 2 mm 的样品对自锁模抑制效果较理想, 同时腔内损耗不大。

对于掺 C_{60} 的有机玻璃而言, 在这种固化样品中, C_{60} 的含量相对较高, 在较薄的样品中就会存在明显的非线性吸收。在腔内使用固化样品, 最大优越性在于不必用样品池, 因为样品池两个端面的平板玻璃会在激光腔中造成不利的影 响, 且溶液样品易挥发, 不利于长期使用。

从 C_{60} 分子的吸收谱^[10]来看, C_{60} 分子在 1064 nm 附近单光子吸收非常弱。可能存在较为明显的双光子吸收^[11]。这种双光子吸收过程会产生反饱和吸收的效果。即光强越大, 等效的线性吸收系数越大。特别是在法布里-珀罗腔中, 这种双光子过程对激光时间波形的影响特别明显。实验已证实了这种双光子过程可以导致比较明显的光限制效应^[12], 激光波形畸变如自锁模尖峰倒序和激光脉冲压缩等效应。另一方面, 在谐振腔内激光较强, 同时, C_{60} 分子被光作用的时间比较长。首先, C_{60} 分子将激发到单重第一激发态 S_1 某些振动-转动能级上, 然后在非常短的时间内 (< 1 ps) 通过非辐射跃迁弛豫到较低振转能级上, 然后通过系际弛豫 $S_1 \rightarrow T_1$ 转移到寿命很长的三重第一激发态 T_1 上 (280 μs)。在 1064 nm 处通过 T_1 的线性吸收同样非常弱^[13]。当把这种非线性吸收样品放置在激光腔内时, 非线性吸收有削弱光功率密度较大的不完全锁定的模式的趋势, 导致腔内自锁模尖峰的降低乃至消失, 形成自锁模效应的部分或完全抑制。由于样品的非线性吸收与样品中 C_{60} 的含量以及样品的厚度有关, 浓度越高或样品越厚, 非线性吸收越明显, 从而自锁模的抑制的效果越好, 这与实验中所观测到的结果相吻合。当然, 实际实验中, 要考虑到不能加入过大的腔内损耗。

结 论 本文首次报道了利用 C_{60} 的非线性效应来抑制 Nd:YAG 激光器中的自锁模效应的实验结果, 文中同时给出了相应实验结果的定性理论分析。由于自锁模现象在固体激光器件中普遍存在并且常常会造成诸多不利后果。例如, 输出激光波形的畸变, 输出激光功率的不稳定等。在高功率激光器件中, 表现尤为明显。这些不稳定的自锁模调制尖峰对后级激光放大, 以及波形重整如斩波带来的不利影响更为突出。因而, 本文的结果对解决这些问题具有实际意义。

参 考 文 献

- [1] Y. Wang, Photoconductivity of fullerene-doped polymerd. *Nature*, 1992, **356**(4): 585~587
- [2] L. W. Tutt, Alan Kost, Optical limiting performance of C_{60} and C_{70} solutions. *Nature*, 1992, **356**(2): 255~256
- [3] D. G. Mclean, R. L. Sutherland, M. C. Brant *et al.*, Nonlinear absorption study of a C_{60} -toluene solution. *Opt. Lett.*, 1993, **18**(11): 858~860
- [4] X. K. Wang, T. G. Zhang, W. P. Lin *et al.*, Large second-harmonic response of C_{60} thin films. *Appl. Phys. Lett.*, 1992, **60**(7): 810~812
- [5] Z. H. Kafafi, F. J. Bartoli, J. R. Lindle *et al.*, Comment on large infrared nonlinear optical response of C_{60} . *Phys. Rev. B*, 1992, **68**(17): 2705

- [6] Yue Zhang, Yiping Cui, Parsad, Observation of photorefractivity in a fullerene-doped polymer composite. *Phys. Rev. B*, 1992, **46**(15) : 9900~9902
- [7] B. L. Justus, Z. H. Kafafi, A. L. Huston, Excited-state absorption enhanced thermal optical limiting in C_{60} . *Opt. Lett.*, 1993, **18**(19) : 1603~1605
- [8] Alan Kost, Lee Tutt, Marvin B. Klein *et al.*, Optical limiting with C_{60} in polymethyl methacrylate. *Opt. Lett.*, 1993, **18**(5) : 334~336
- [9] 林福成, 吴正亮, 茅森等, 富勒碳研究的新进展. *高技术通讯*, 1993, **3**(5) : 4~8
- [10] J. P. Hare, H. W. Kroto, R. Taylor, Preparation and UV/visible spectra of fullerenes C_{60} and C_{70} . *Chem. Phys. Lett.*, 1991, **177**(4,5) : 394~398
- [11] Gautam B. Talapatra, Neelkandam Manickam, Marek Samoc *et al.*, Nonlinear optical properties of the C_{60} Molecule: theoretical and experimental studies. *J. Phys. Chem.*, 1992, **96**(4) : 2506~2508
- [12] Fucheng Lin, Jiran Zhao, Ting Luo *et al.*, Optical limitation and bistability in fullerene. *J. Appl. Phys.*, 1993, **74**(3) : 2140~2142
- [13] J. W. Arbogast, A. P. Darmanyan *et al.*, Photophysical properties of C_{60} . *J. Phys. Chem.*, 1991, **95**(1) : 11~12

Quenching of Self Mode-Locking Action in a Free Running Nd:YAG Laser with Fullerenes

Luo Ting Zeng Heping Zhao Jiran Jiang Minhua
Meng Zhicong Mao Sen Lin Fucheng

(Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Academia Sinica, Shanghai 201800)

(Received 16 December 1993; revised 19 January 1994)

Abstract In this paper we investigate the effect of fullerenes inside a free running Nd:YAG laser cavity. It is found that the strong nonlinear absorption of fullerene molecules can smooth the self mode-locking pulse series in the nanosecond time region, which is estimated to be a result of the two-photon absorption of fullerenes.

Key words fullerenes, self mode-locking, two-photon absorption.