

# Nd : YAG 的 CPM腔设计 及最佳可饱和吸收体的选择\*

林 星 张文珍 吴逢铁

孙占鳌\*\*

(华侨大学)

(中科院上海光机所)

## 摘 要

本文设计了抗共振环形CPM谐振腔,得到了10PS左右脉宽的锁模脉冲;选择了最佳可饱和吸收体,并从理论上解释了实验中的现象\*

## 一、引 言

近几年来,已经有了连续环形激光器对撞脉冲锁模的可靠技术,同时也得到了被动锁模Nd:YAG激光器的对撞脉冲锁模(简称CPM)。这种CPM技术是指腔内两个同步对向运行的脉冲在薄的可饱和吸收体内相撞干涉构成驻波场;干涉极大处光强成四倍增加,大量粒子跃迁到上能级;干涉极小处光强趋于零,无粒子跃迁,这就形成瞬态粒子数分布光栅;这样使得光脉冲在时间和空间上准确同步,锁模脉冲变窄,稳定性提高。为此,本文从实验和理论上探讨对撞脉冲锁模Nd:YAG激光器的最佳情况,尤其对可饱和吸收体进行比较,找出最佳的锁模染料和溶剂。

## 二、实验方法与结果

### 谐振腔

为了得到较好的Nd:YAG锁模激光器,首先对最佳谐振腔的设计进行了探讨,考虑到

本文1986年1月17日收到。

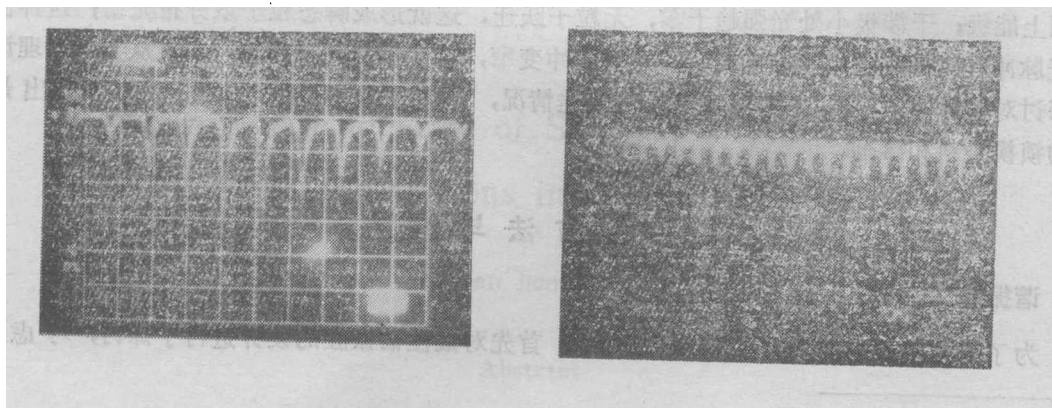
• 本文为85年美国《国际激光科学会》论文,详细摘要发表于《*Bulletin of the American Physisc Society*》30, 10 (1985), 1836.

• • 本文作者还有华侨大学的庄辉鸣、郑云山。

被动锁模介质中最敏感的就是不稳定性,这个不稳定性是由于辐射与可饱和吸收体相互作用的非线性性质产生的,也和锁模过程中的统计性质有关。对于高增益的激光器来说,那怕是很小不稳定的脉冲,在腔内往返多次,它能够放大到极不利的程度,所以最佳谐振腔的设计是要防止在腔内任何有影响被动锁模的原始涨落。根据一般的理论,从稳定性参量 $S = k(\frac{\sigma_a}{\sigma_g})$ 推算出腔的结构,其中 $K$ 表示光束在增益介质处的光束面积与光束在吸收介质处的光束面积比,通常是大于1的常数; $\sigma_a$ 为可饱和染料的吸收横截面; $\sigma_g$ 为增益介质的放大横截面。于是我们设计了对撞脉冲抗共振环形锁模腔形<sup>[1]</sup>。总腔长为1655mm,全反射凹面镜的曲率半径为3m,反射镜与YAG棒中心距离为1070mm。另一端由一个45°入射的半反半透介质膜片(对1.06 $\mu$ )与两个22.5°的全反射介质膜片(对1.06 $\mu$ )组成的抗共振环路,其长度为430mm(实际光程为430/2=215mm)。YAG棒中心至45°入射的半反半透介质膜片的距离为370mm,中间插入一样的介质膜片作为输出镜。根据这样的腔体与其它的被动锁模激光器比较,它的输出能量较高,锁模脉冲序列稳定性好。

### 最佳锁模染料和溶剂的选择

可饱和吸收体染料的特性对CPM的质量有着重要的关系。这是由于对撞脉冲锁模在染料溶液中生成了瞬态光栅,压缩了脉冲宽度,提高了锁模质量,所以选择锁模最佳染料和溶剂是重要的。我们现在对被动锁模中普通使用的五甲川、十一甲川以及五甲川溶于几种溶剂的一些特性的比较,同时对BDN染料片作为可饱和吸收体来锁模的可能性进行了初步的探讨。我们选择五甲川染料溶于二氯乙烷、硝基苯、硝基苯加二氯乙烷(1:1)、氯仿等溶剂,其透过率(对1.01 $\mu$ )分别为:53.4、54、49.8、51.7,测得平均脉宽相应为11、16、16、19(PS)。在500MHz示波器上观察到CPM脉冲序列,没有发现它们之间有什么明显的差别。脉冲序列的总宽度均在120ns左右,二氯乙烷的CPM波形最稳定,脉宽最窄(见图1a),氯仿最差,其它二种介在中间<sup>[2]</sup>。同时也对十一甲川染料溶于丙酮中(波形见图1b),BDN



(a)五甲川+1.2—二氯乙烷的CPM波形图  
(图中:100mV/格,10ns/格)

(b)十一甲川+丙酮的CPM波形图  
(图中:100mV/格,20ns/格)

图1 CPM 波形图

染料片(天津激光所制的 BDN 染料片厚度 0.1mm,  $T_0 = 46\%$ )进行实验。前者脉冲序列总宽度约为 300ns 比五甲川宽得多, 稳定性较差, 后者脉冲序列总宽度与五甲川相近, 但锁模质量差, 我们认为进一步探讨, 将来作为 CPM 可饱和吸收体是有可能的。

### 三、理 论

已有的固体激光器中的被动锁模理论是不考虑对撞脉冲锁模的情况, 现在我们必须重新探讨激活介质和可饱和吸收体在对撞锁模中的机理<sup>[3, 4]</sup>。激活介质受到氙灯泵浦后, 其辐射场在谐振腔中振荡, 产生了无规噪声脉冲, 这时激活介质和可饱和吸收体在脉冲发展中分为线性阶段、非线性阶段和巨脉冲阶段等。在线性阶段中激活介质处于频率为  $\nu_h$  时的增益与激光能级的粒子数差和频率为  $\nu_h$  时的光谱线线型函数  $g(\nu_h)$  相乘积成正比, 所以在泵浦辐射影响下反转的生长期间, 中心频率模首先达到阈值, 然后推广到其它模, 这就是说接近中心模较早激发, 远离中心模将滞后一段时间才开始振荡。因此增益谱线外型为钟形, 即谱线外形中心比旁边的有更多的增益。激活介质在脉冲发展的线性阶段与非线性阶段等和原来被动锁模提出的理论是一致的, 而不同的是在可饱和吸收体上。

现在研究两个同频率, 近似等振幅的光脉冲在可饱和吸收体内相向运行的情况。设光脉冲在腔内多次往返后, 这时两束光脉冲的电场强度可写为

$$E_1(z, t) = A_1(t)e^{-ikze^{-i\omega_n t}}$$

$$E_2(z, t) = A_2(t)e^{ikze^{-i\omega_n t}}$$

这时在可饱和吸收体内相向脉冲总电场强度可表示为

$$\begin{aligned} E(z, t) &= E_1(z, t) + E_2(z, t) \\ &= A_1(t)e^{-ikze^{-i\omega_n t}} + A_2(t)e^{ikze^{-i\omega_n t}} \\ &= 2A_1(t)\cos kze^{-i\omega_n t} + (A_2 - A_1)e^{ikze^{-i\omega_n t}} \end{aligned}$$

设  $A_2(t) - A_1(t) \ll A_1(t) \approx A_2(t)$ , 后一项可以忽略不计。  $2A(t)\cos kz$  表示驻波振幅。在  $z$

$= (2n+1)\frac{\lambda}{4}$  的各处, 振幅  $\left| 2A_1 \cos \frac{2\pi}{\lambda} z \right| = 0$ ,  $z = 2n \cdot \frac{\lambda}{4}$  ( $n$  为正整数) 各处, 振幅  $\left| 2A_1 \cos \frac{2\pi}{\lambda} z \right|$  为最大时, 其值为  $2A_1$  这<sub>2</sub>就是两束光干涉后, 光强的最大为原来的四倍左右。

可饱和吸收体受到光脉冲的作用引起了本身许多粒子产生偶极矩  $\vec{d} = e \cdot \vec{r}$ , 单位体积内这些偶极矩的总和为宏观的极化强度, 总的极化强度为两个对向光脉冲的总和

$$p(z, t) = -\frac{1}{2} [p_1(t)e^{-ikz} + p_2(t)e^{ikz}]e^{-i\omega_n t} + c.c.$$

现在来研究一下对撞脉冲在五甲川、十一甲川等溶于溶剂中的情况。

这些有机染料是含有共轭双键的有机化合物, 它们原子间具有  $\sigma$  键及  $\pi$  键, 有几十个、几百个原子组成的分子结构。这些染料分子基本上是平面的, 各个原子间用  $\sigma$  键联结起来,  $\pi$  电子在分子平面中有节点, 形成公共的共轭键平面的上方或下方的电子云, 这种情况和金

属模型很相似，金属模型的实质是由原子有规则的排列作为金属的晶格，形成了周期场，所以价电子在这样一块金属内部自由运动，就像在无限高壁的势箱内周期场内运动。有机染料分子中的电子就在分子中周期场内运动，可用量子力学薛定谔方程式来描述。从而求出它们的能级和波函数。根据弗兰克 - 高登原理，它们的吸收和发射光谱有几百埃斯托克频移。我们先用四能级简图来表示<sup>[6]</sup>。

$S_0, S_0^v$  和  $S_1, S_1^v$  分别表示基态及第一激发态，右上方角标表示振动量子数，直线表示辐射跃迁，点线表示非辐射性跃迁(图2)。

实验结果表明这些染料分子还有激发态吸收  $S_1 \rightarrow S_2$  和跃迁到三重态  $S_1 \rightarrow T$  等。这样需要进一步考虑到这些能级群。为了简化，我们把  $S_0^0, \dots, S_0^v$  用“1”能级表示基态的子能级群。 $S_1^0, \dots, S_1^v$  用“2”能级表示第一激发态的子能级群。 $S_2$  用“3”能级表示第二激发态， $T$  用“4”能级表示三重态的子能级群。(BDN 染料片是一种具有矩形平面结构的二价过渡金属络合物溶于有机玻璃，也可以用上述四能级简图表示)。据此，我们应用的染料和溶剂可以概括为四个能级系统，它们的能级标以“1”、“2”、“3”、“4”，(图3)。能量的本征值为

$\varepsilon_a, \varepsilon_b, \varepsilon_c, \varepsilon_d$ , 相应能量的本征函数为  $U_a(q), U_b(q), U_c(q), U_d(q)$ 。这时波函数为

$$\Psi(q, t) = a(t)U_a(q) + b(t)U_b(q) + c(t)U_c(q) + d(t)U_d(q)$$

这里

$$a(t) = Ae^{-i\frac{\varepsilon_a t}{\hbar}}, \quad b(t) = Be^{-i\frac{\varepsilon_b t}{\hbar}}, \quad c(t) = Ce^{-i\frac{\varepsilon_c t}{\hbar}}, \quad d(t) = De^{-i\frac{\varepsilon_d t}{\hbar}}$$

考虑到粒子在能级1、2、3、4上的衰减率各为  $r_a, r_b,$

$r_c, r_d$ , 则在对应本征函数前面引入衰减因子  $e^{-\frac{r_a}{2}t}$ ,

$e^{-\frac{r_b}{2}t}, e^{-\frac{r_c}{2}t}, e^{-\frac{r_d}{2}t}$ 。这时

$$a(t) = Ae^{-i\frac{\varepsilon_a t}{\hbar}} e^{-\frac{r_a}{2}t}, \quad b(t) = Be^{-i\frac{\varepsilon_b t}{\hbar}} e^{-\frac{r_b}{2}t}$$

$$c(t) = ce^{-i\frac{\varepsilon_c t}{\hbar}} e^{-\frac{r_c}{2}t}, \quad d(t) = De^{-i\frac{\varepsilon_d t}{\hbar}} e^{-\frac{r_d}{2}t}$$

那么薛定谔方程式为

$$\hat{H}_0 \Psi(q, t) = i\hbar \frac{\partial \Psi(q, t)}{\partial t} = \left( \varepsilon_a - i\frac{r_a \hbar}{2} \right) a(t) u_a(q) + \left( \varepsilon_b - i\frac{r_b \hbar}{2} \right) b(t) u_b(q)$$

$$+ \left( \varepsilon_c - i\frac{r_c \hbar}{2} \right) c(t) u_c(q) + \left( \varepsilon_d - i\frac{r_d \hbar}{2} \right) d(t) u_d(q) \text{。当可饱和吸收体处在电场强}$$

度为  $E(z, t)$  的辐射场内，使可饱和吸收体内粒子电极化，总电极化强度为  $p$ ，则辐射场与可饱和吸收体相互作用微扰能的算符为  $\hat{H}_1 = -\hat{p} \cdot \hat{E}$ ，于是可饱和吸收体处在电场强度为  $E(z, t)$

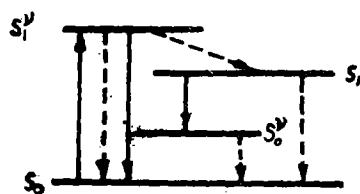


图2 有机染料  $S_0 \rightarrow S_1$  能级图

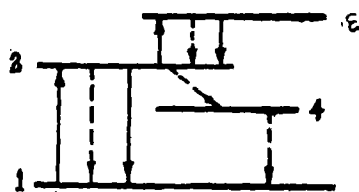


图3 有机染料四能级图

的辐射场, 其粒子运动规律为

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{H}_1, \quad \hat{H}\psi = i\hbar \frac{\partial \psi}{\partial t}.$$

$$\begin{aligned} \hat{H}\psi(q, t) &= \left(\varepsilon_a - \frac{ir_a\hbar}{2}\right)a(t)u_a(q) + \cdots + \left(\varepsilon_d - \frac{ir_d\hbar}{2}\right)d(t)u_d(q) \\ &\quad + a(t)\hat{H}_1u_a(q) + \cdots + d(t)\hat{H}_1u_d(q) \\ &= i\hbar\dot{a}(t)u_a(q) + \cdots + i\hbar\dot{d}(t)u_d(q) \end{aligned}$$

两边分别乘以  $u_a^*(q)$ 、 $u_b^*(q)$ 、 $u_c^*(q)$  及  $u_d^*(q)$ , 然后对  $q$  积分得

$$i\hbar\dot{a}(t) = a\left(\varepsilon_a - \frac{ir_a\hbar}{2}\right) + bV_{ab} + cV_{ac} + dV_{ad}$$

⋮

$$i\hbar\dot{d}(t) = d\left(\varepsilon_d - \frac{ir_d\hbar}{2}\right) + aV_{da} + bV_{db} + cV_{dc}$$

其中

$$V_{ab}(t) = \int u_a^*(q)\hat{H}_1u_b(q)dq, \quad \cdots$$

我们知道  $b$  能级跃迁至  $d$  能级的吸收横截面比  $a$  能级跃迁至  $c$  能级的吸收横截面较小, 只有  $1/4$  左右. 为了简化, 把上面各关系式去掉有关  $d$  能级的各项. 于是粒子的几率密度变化率方程可写为

$$\frac{d(aa^*)}{dt} = -r_a(aa^*) - \frac{i}{\hbar}(a^*b - ab^*)V_{ab} - \frac{i}{\hbar}(a^*c - ac^*)V_{ac}$$

$$\frac{d(ca^*)}{dt} = \frac{ca^*}{i\hbar}(\varepsilon_c - \varepsilon_a) - ca^*\left(\frac{r_c - r_a}{2}\right) + \frac{1}{i\hbar}[a^*aV_{ca} + c^*cV_{ac} + a^*bV_{cb} + cb^*V_{ab}]$$

$$V_{ab}(t) = \int u_a^*(q)(-\hat{P} \cdot \hat{E})u_b(q)dq = -E \int u_a^*(q)\hat{P}u_b(q)dq = -EP_{ab}$$

$$V_{ca}(t) = \int u_c^*(q)(-\hat{P} \cdot \hat{E})u_a(q)dq = -E \int u_c^*(q)\hat{P}u_a(q)dq = -EP_{ca}$$

上述方程式经过运算后, 可以得到对向光脉冲通过可饱和吸收体后, 其基态粒子的跃迁与驻波场电场强度平方有关, 所以沿着可饱和吸收体  $z$  方向建立瞬态粒子数分布光栅, 形成了振幅光栅和位相光栅. 这样可饱和吸收体不但起了选择脉冲的作用, 还使光脉冲稳定及光脉冲宽度变窄, 因此必须要求这个瞬态振幅光栅和位相光栅稳定, 瞬态光栅的周期也要稳定, 并且要小于光脉冲在腔内往返的时间. 总之, 这些要求与可饱和吸收体分子结构的光谱性能有关. 我们认为要达到这些目的, 要求有机染料的荧光效率要高, 恢复时间要小于光脉冲在腔内往返的时间, 光热的稳定性要好.

我们知道影响有机染料的荧光辐射是无辐射过程, 它是由于内转换过程及从  $S_1$  态到三重态  $T_1$  之间发生的系际交叉跃迁等引起的. 此外三重态间的吸收光谱, 染料分子彼此间紧靠 10 毫微米附近时产生了所谓浓缩猝灭, 同时受到周围效应, 如电荷转换相互作用的荧光猝灭、能量转换引起荧光猝灭等.

通常我们确定高荧光效率的有机染料分子, 首先要分析染料分子的结构是不是平面及刚

体的,还是可动的。前者一般说来有高的荧光效率,如果某些基是可动的,而且染料分子的生色团末群中氢原子易于振动,造成荧光效率很低,就要寻找一种溶剂使新的生成物能够消除或减轻结构上的可动性。如消除或减弱原子的振动要用较重的原子去代替,但是重原子产生较大的生色团 $\pi$ 电子的轨道磁矩与自旋的耦合,使系际交叉速率加大,三重态吸收加强,反转的粒子几率减少。所以寻找溶剂时多方面情况都要考虑。其次,假如有机染料分子结构是刚性的,还要判断产生系际交叉跃迁几率是大还是小,三重态吸收是大还是小的,因为它们对荧光效率影响很大。例如三重态吸收寿命很长,大约 $10^{-3}$ 秒,这大大破坏了粒子数分布光栅,因此要加入适合的溶剂,使有机染料分子吸收跃迁到电荷振动的激发态后与溶剂分子碰撞就可减少三重态吸收,它的能量被溶剂分子接受后,可使染料分子非常迅速地返回到基态。但加进溶剂后,还要注意有机染料分子的荧光由于一定阴离子产生电荷转换相互作用而猝灭,因此其荧光效率由于生色团的阴离子与溶剂相互作用,要由溶剂的浓度和极性来决定。即极性高的溶剂比极性低的溶剂大得多的荧光效率,但浓度高的溶剂,即染料溶液里反应物彼此很接近,虽能量转换过程很有效,但由于分子间距比10毫微米小时,染料分子就发生浓度荧光猝灭。总之,有机染料溶剂的选择,要根据染料分子的不同以及溶剂的浓度和极性 etc 来决定。

我们实验采用的五甲川染料溶于二氯乙烷(激光纯)、硝基苯、硝基苯加二氯乙烷(1:1)、氯仿(A·R级)等,从它们锁模的情况来看,基本上是符合上述要求的,而溶于激光纯的二氯乙烷为最佳。我们进行过五甲川染料溶于纯度较差(A·R级)的二氯乙烷的实验,虽然能够锁模,但不稳定,并且很快就失效。A·R级的二氯乙烷,它难以克服五甲川的染料分子三重态吸收等,虽然光脉冲开始通过时,也能饱和漂白,但是三重态寿命很长( $10^{-3}$ 秒),大大超过了光脉冲在腔内往返时间,这样瞬态光栅(振幅光栅和位相光栅)不稳定。我们实验中BDN染料片能锁模,但质量差,根据上述的分析,这与选择有机玻璃作为溶剂有关,也和有机玻璃的纯度、浓度、极性等有关。因此估计进一步研究,改选的BDN染料片有希望作为锁模的可饱和吸收体。

#### 四、结 论

我们根据一般的理论,从谐振腔的稳定性参数 $S = k(\sigma_a/\sigma_g)$ 出发,设计了抗共振环形CPM腔,得到10 PS左右的脉冲宽度。

分析了对撞脉冲锁模染料与溶剂的结构特点,从而有目的地比较了五甲川、十一甲川锁模染料的性能,并对五甲川的几种溶剂进行了探讨,认为在我们的CPM腔中最好的锁模染料为五甲川,最佳的溶剂为激光纯的1,2-二氯乙烷。由于超短光脉冲技术的不断发展与完善,对最佳可饱和吸收体的选择工作也应不断地进行,使达到满意的使用结果。

本文还着重讨论了两个同频率、近似等振幅的光脉冲在可饱和吸收体内相向运行的情况,经过运算得到两个相向的光脉冲通过可饱和吸收体后,其基态粒子数的跃迁与驻波场电场强度平方有关,使之形成了振幅光栅和位相光栅,从而压缩了锁模脉宽并使之更加稳定。

## 参 考 文 献

- [1] 林星等, 光学学报, 5, 9 (1985), 794.
- [2] 林星等, 中国激光, 13, (1986).
- [3] M. Yoshizawa and T. Kobayashi, Journal of Quantum Electronics, IEEE, QE20,7 (1984), 797.
- [4] D. Kuhlke, W. Rudolph and B. Wilhelmi, Journal of Quantum Electronics, IEEE, QE19,4 (1983), 526.
- [5] 赵燕曾, 激光, 7, 9 (1980), 2.

## A Study on Nd:YAG Laser of Colliding Pulse Mode Locking and Selection of Saturable Absorbers

Lin Xing Zhang Wengzheng Wu Fengtie Sun Zhanao

### Abstract

A colliding pulse mode locking resonator with antiresonant ring structure was designed. The mode locked pulse duration was measured to be 10 ps. The optimal saturable absorbers were selected. The phenomena observed in experiments were explained on a theoretical basis.