

双 泵 染 料 激 光 器^{*}

刘 皇 风 王 联 治

(郑州大学物理系) (中国科学院物理研究所)

提 要

本文讨论了双泵染料激光器的可能性和途径。讨论表明,引进辅助的 $T_1 \rightarrow S_1$ 抽运,对于降低激光器的阈值,提高增益和荧光量子效率,扩大激光染料的种类和调频波段,将是有益的。

一、引 言

在染料激光器中,三重态的处理是一个十分重要的问题^[1]。由于第一激发单态 S_1 到三重态 T_1 的系际交叉速率比三重态的弛豫速率大得多,三重态就象陷阱一样,随着泵浦时间增加而积累起大量粒子。这不仅会使基态 S_0 的粒子数减少,影响向 S_1 态的抽运速率;更重要的是,在多数染料中,三重态的吸收谱与 S_1 态的荧光谱均有重叠部分,积累起来的三重态粒子将吸收 S_1 态发射的光量子,造成重大的损耗。这样,三重态的积累将影响激光器的增益、效率和阈值,严重时还可导致激光猝灭。为了获得长的激光脉冲和连续振荡,必须有效地消除 T_1 态上的粒子。通常采用的方法有两种:(1)在激活介质中加入某些猝灭物质(如 O_2 , C_6H_6 等)以加速 $T_1 \rightarrow S_0$ 的弛豫;(2)采用射流以快速更新激活介质。在液体染料激光器中,这些方法收到了很好的效果。但是,它们很难应用到气相染料激光器中去。此外,在这些方法中, T_1 态的粒子是被当作完全无用而有害的破坏因素来对待的。是否可以兴害为利地把它化为有用的因素呢?也就是说,能否将 T_1 态的粒子再泵浦到 S_1 态呢?一切矛盾都依一定条件向它们的反面转化着。关键是认识和创造这样的条件。

为此,我们设想,在将染料分子从 S_0 态抽运到 S_1 态的主泵浦外,另有一辅助泵浦使 $T_1 \rightarrow S_1$ 。辅助泵浦可以采用调频激光束、低能电子及某些共振能量转移过程等。显然,如果 $T_1 \rightarrow S_1$ 的再抽运能够实现,那么,它不仅减少了三重态粒子数,而且增加了 S_1 态的粒子数,因而能有效地降低激光器阈值,提高增益和量子效率,扩大激光染料种类和调频波段。

二、辅助泵浦对染料激光器性能的影响

1. 速率方程

为简单起见,在下面的讨论中,我们假设主泵浦为一激光束,纵向注入(见图 1)。忽

^{*} 1977 年 4 月 9 日收到; 1977 年 11 月 19 日收到修改稿。

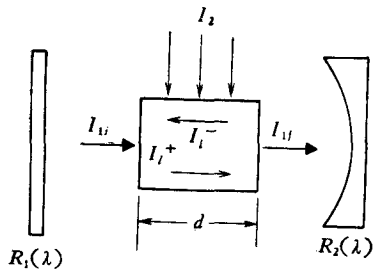


图1 用激光束作辅助抽运的双泵染料激光器示意图

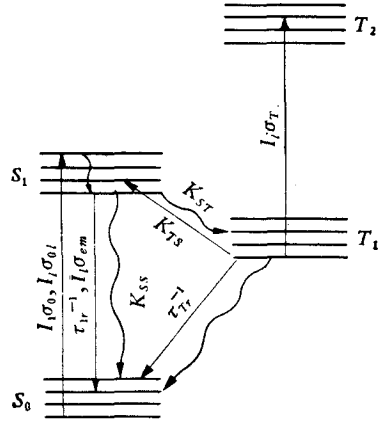


图2 染料分子的有关能级图

略一些次要的过程,仅考虑图2中示出的有关过程,则速率方程为

$$\frac{dN_1}{dt} = I_1\sigma_0N_0 + I_1\sigma_{0l}N_0 - I_1\sigma_{em}N_1 - \frac{N_1}{\tau_{1r}} - K_{ss}N_1 - K_{st}N_1 + K_{ts}N_T, \quad (1)$$

$$\frac{dN_T}{dt} = K_{st}N_1 - \frac{N_T}{\tau_T} - K_{ts}N_T, \quad (2)$$

$$\frac{dI_l^+}{dx} = I_l^+\sigma_{em}N_1 - I_l^+\sigma_{0l}N_0 - I_l^+\sigma_TN_T, \quad (3)$$

$$\frac{dI_l^-}{dx} = -I_l^-N_0, \quad (4)$$

式中 N_0 , N_1 和 N_T 分别为基态 S_0 , 第一激发单态 S_1 和最低三重态 T_1 的粒子数密度。 σ_0 是 S_0 态吸收泵浦光 I_1 跃迁到 S_1 态的截面。 σ_{0l} 和 σ_T 分别为 S_0 态和 T_1 态对激光的吸收截面。 σ_{em} 是受激发射截面。 τ_{1r} 为 S_1 态的自发辐射寿命。 τ_T 为 T_1 态的寿命。 K_{st} 是 $S_1 \rightarrow T_1$ 的实际交叉速率系数。 K_{ss} 是 $S_1 \rightarrow S_0$ 的非辐射弛豫几率。 K_{ts} 是辅助泵浦将 T_1 态的粒子抽运至 S_1 态的速率系数。 $I_l = I_l^+ + I_l^-$, 是激光的总强度。

下面考虑稳态情况。由(2)式得

$$N_T = \frac{K_{st}\tau_T}{1 + K_{ts}\tau_T} N_1.$$

令

$$\alpha = 1/(1 + K_{ts}\tau_T), \quad (5)$$

$$K'_{st} = \alpha K_{st}, \quad (6)$$

则有

$$N_T = K'_{st}\tau_T N_1. \quad (7)$$

当 $K_{ts} = 0$ 时, $\alpha = 1$,

$$N_T = K_{st}\tau_T N_1. \quad (8)$$

这是熟知的结果。

将(7)式代入(1)式中直接与三重态粒子数密度有关的项,则有

$$K_{st}N_1 - K_{ts}N_T = K'_{st}N_1. \quad (9)$$

将(9)式代入(1)式,并令

$$\tau_1'^{-1} = \tau_{1r}^{-1} + K_{ss} + K'_{st}, \quad (10)$$

则得

$$\frac{dN_1}{dt} = I_1\sigma_0 N_0 + I_l\sigma_{0l}N_0 - I_l\sigma_{em}N_1 - \frac{N_1}{\tau_1}. \quad (11)$$

从(3),(4),(7)及(11)式可见,引入辅助泵浦后对 N_1 , N_T 及 I_l 的影响,可以归结为系际交叉速率系数由 K_{ST} 变为 K'_{ST} . 我们称 K'_{ST} 为表观系际交叉速率系数. 当有辅助泵浦时,只需用 K'_{ST} 代替无辅助泵浦时速率方程中的 K_{ST} 即可. 这样,全部问题归结为计算 $K'_{ST} = K_{ST}/(1 + K_{TS}\tau_T)$, 亦即计算 K_{TS} . 如果 K_{TS} , τ_T 已知,不难求出辅助泵浦对激光器工作性能的影响.

2. 对 N_T/N_1 的影响

由(7)式有

$$N_T/N_1 = \frac{1}{1 + K_{TS}\tau_T} K_{ST}\tau_T = K_{ST}/(\tau_T^{-1} + K_{TS}). \quad (12)$$

即 K_{TS} 和 τ_T^{-1} 对于 N_T/N_1 的影响是等同的. 只要 K_{TS} 的大小可以同 τ_T^{-1} 相比较,辅助泵浦就可明显地改变 N_T/N_1 值,改善激光器的性能.

令 $K_{TS} = \tau_T^{-1}$. 由(5),(6)式得 $K'_{ST} = K_{ST}/2$. 即当辅助泵浦对 $T_1 \rightarrow S_1$ 的抽运速率等于 T_1 态的弛豫速率时,其净效果相当于使 $S_1 \rightarrow T_1$ 的速率减半,因为 $S_1 \rightarrow T_1$ 的粒子,有一半弛豫到基态,另一半被辅助泵浦抽运回 S_1 态. 相应地, N_T/N_1 也减半.

考虑更普遍的情况. 令 $K_{TS} = (m-1)/\tau_T$, 则有

$$K'_{ST} = K_{ST}/m. \quad (13)$$

它的物理意义也是很明显的: 由于系际交叉过程, $S_1 \rightarrow T_1$ 的速率为 $N_1 K_{ST}$, 其中有 $\frac{m-1}{m} N_1 K_{ST}$ 又被抽运回 S_1 态,故 $S_1 \rightarrow T_1$ 的净速率仅为 $N_1 K_{ST}/m$.

3. 对荧光量子效率的影响

无辅助泵浦时荧光量子效率

$$\phi = \tau_{lr}^{-1}/(\tau_{lr}^{-1} + K_{ss} + K_{ST});$$

有辅助泵浦时,荧光量子效率

$$\phi' = \tau_{lr}^{-1}/(\tau_{lr}^{-1} + K_{ss} + \alpha K_{ST}). \quad (14)$$

表1 不同的 α 和 β 值下, ϕ' 与 ϕ 的数值关系

ϕ' / ϕ		α	0.4	0.5	0.6	0.7	0.8	0.9
β	0.5	0.1	0.63	0.71	0.79	0.85	0.91	0.96
		0.01	0.67	0.75	0.82	0.89	0.93	0.96
0.1		0.1	0.79	0.85	0.90	0.93	0.96	0.98
		0.01	0.88	0.92	0.94	0.96	0.98	0.99

消去 τ_{lr} , 并设 $K_{SS} = \beta K_{ST}$, 则有

$$\phi' = \phi / \left[\phi \frac{1-\alpha}{1+\beta} + \frac{\alpha+\beta}{1+\beta} \right]. \quad (15)$$

表 1 列出了不同的 α, β 值下, ϕ' 与 ϕ 的关系. 它们表明, 辅助泵浦对荧光量子效率的影响是十分显著的. 对于那些主要因 K_{ST} 大而造成荧光量子效率低的染料, 效果尤为突出. 这有可能为寻找新的激光染料提供一条途径.

4. 对增益的影响

将 (7) 式代入 (3) 式得

$$\frac{dI_l^+}{dx} = I_l^+ (\sigma_{em} N_1 - \sigma_{ol} N_0 - \sigma_T K'_{ST} \tau_T N_1),$$

即

$$\frac{dI_l^+}{I_l^+} = [(\sigma_{em} - \sigma_T K'_{ST} \tau_T) N_1 - \sigma_{ol} N_0] \frac{dx}{dI_1} dI_1.$$

令 $\sigma_{ef} = \sigma_{em} - \sigma_T K'_{ST} \tau_T$, 并将 (11) 式和 (4) 式代入, 得

$$\frac{dI_l^+}{I_l^+} = \frac{\sigma_{ol}(I_l \sigma_{em} + \tau_1'^{-1}) - \sigma_{ef} \sigma_{ol} I_l}{\sigma_0(I_l \sigma_{em} + \tau_1'^{-1})} \frac{dI_1}{I_1} - \frac{\sigma_{ef}}{I_l \sigma_{em} + \tau_1'^{-1}} dI_1. \quad (16)$$

设 $G = I_{li}^+ / I_{lf}^+$ 为无谐振腔损耗情况下激活介质的单程增益, 其中 I_{li}^+ 和 I_{lf}^+ 分别为始端和终端激光的强度. 考虑到 I_l 与 x 无关^[2], 对 (16) 式两端积分, 得

$$\begin{aligned} \ln G &= \ln \frac{I_{li}^+}{I_{lf}^+} = \frac{\sigma_{ef}(1-T)I_{li}\tau_1'}{1+I_l\sigma_{em}\tau_1'} + Y \frac{1+I_l\tau_1'(\sigma_{em}-\sigma_{ef})}{1+I_l\sigma_{em}\tau_1'} \ln T \\ &= \frac{\sigma_{ef}(1-T)I_{li}\tau_1'}{1+I_l/I_s} + Y \frac{1+I_l/I_K}{1+I_l/I_s} \ln T, \end{aligned} \quad (17)$$

式中, $Y = \sigma_{ol}/\sigma_0$, $I_s^{-1} = \sigma_{em}\tau_1'$, $I_K^{-1} = \sigma_T K'_{ST} \tau_T \tau_1'$, $T = I_{lf}/I_{li}$, I_{li} 和 I_{lf} 分别为进入和离开激活介质的主泵浦光强度. 从 (17) 式可见, 引入辅助泵浦, 不仅对于 K_{ST} 较大的染料能使 I_s 增大, 减弱增益饱和效应; 同时, 它还能增加小讯号增益, 对于 σ_T 较大的波段和 K_{ST} 较大的染料尤为明显.

5. 对 S_1 态阈值密度 N_{lc} 的影响

设激活介质长度为 d , 谐振腔两端反射镜的反射系数为 $R_1(\lambda)$ 和 $R_2(\lambda)$. 由速率方程可得

$$\frac{N_{lc}}{N} = \frac{1}{\gamma(\lambda)} \left[\sigma_{ol}(\lambda) + \frac{r(\lambda)}{N} \right], \quad (18)$$

式中, $N = N_0 + N_1 + N_T$, 是染料的浓度. $r(\lambda) = \frac{1}{2d} \ln(R_1 R_2)$. $\gamma(\lambda) = \sigma_{em}(\lambda) + \sigma_{ol}(\lambda) + K'_{ST} \tau_T [\sigma_{ol}(\lambda) - \sigma_T(\lambda)]$. 在荧光谱和三重态吸收谱重叠的波段, 可以认为 $\sigma_{ol}(\lambda) = 0$, 则有 $\gamma(\lambda) = \sigma_{em}(\lambda) - K'_{ST} \tau_T \sigma_T(\lambda)$. 显然, 辅助泵浦的存在, 使得在这个波段范围内 S_1 态阈值密度 N_{lc} 下降, 这对于扩大染料激光器在长波端的调频范围是有益的.

三、实现 $T_1 \rightarrow S_1$ 抽运的可能途径

前面我们讨论了引进辅助的 $T_1 \rightarrow S_1$ 抽运可能对染料激光器性能带来的影响. 这里, 我们来讨论一下实现 $T_1 \rightarrow S_1$ 抽运的可能性和途径.

1. 调频激光束 I_2

为了避免 $S_1 \rightarrow T_1$ 的受激发射, I_2 的频率对准 T_1 态的 $\nu = 0$ 振动态到 S_1 态的高振动态. 近似地, 假设 $S_1 \rightarrow T_1$ 与 $T_1 \rightarrow S_0$ 的受激发射系数相等, 则得 $T_1 \rightarrow S_1$ 的吸收截面为

$$\sigma_{TS}(\lambda_2) = \frac{n_2 \lambda_2^3 E(\lambda_2)}{8\pi c n_T^3 \tau_{Tr}}, \quad (19)$$

相应地,

$$K_{TS} \tau_T = \sigma_{TS} I_2 \tau_T = 6.8 \times 10^{10} \frac{n_2 \lambda_2^3 \lambda_T^3 E(\lambda_2) P_2 \tau_T}{n_T^3 \tau_{Tr}}, \quad (20)$$

式中, λ_2 和 λ_T 分别为 $S_1 \rightarrow T_1$ 和 $T_1 \rightarrow S_0$ 的辐射波长, n_2 和 n_T 为相应的折射系数, $P_2 = h\nu_2 I_2$ [瓦·(厘米) $^{-2}$ ·秒 $^{-1}$], 它是辅助泵浦光的功率密度. 对于典型的激光染料, $\sigma_{TS} I_2 \tau_T$ 大约为 $(10^{-6} - 10^{-5}) P_2 \tau_T / \tau_{Tr}$ 量级. 在不存在非辐射弛豫机制的情况下 (即 $\tau_T / \tau_{Tr} = 1$), 现有激光器的输出功率水平有可能明显地改变 K'_{ST} 值.

2. 低能电子

跃迁前后染料分子始态和终态的自旋改变为 1. 为了维持电子-染料分子作用前后体系的总自旋守恒, 出射电子的自旋必须与入射电子的自旋反向. 这类电子交换过程的截面可以高达 10^{-16} (厘米) $^{-2}$ 量级^[3], 要求的电子能量也很低. 因此, 当电子密度充分大时, 有可能提供必要的 $T_1 \rightarrow S_1$ 抽运速率.

3. 共振能量转移

按照 Wigner 自旋定则, 图 3 中的两类过程可考虑用于 $T_1 \rightarrow S_1$ 的共振能量转移跃迁. 图中 A 是染料受主分子, D 是施主原子或分子. 为了使转移过程有足够的速率和较大的能量转换效率, 还必须满足: (1) 施主与受主的能级匹配; (2) D^{**} 的寿命长, D^* 的寿命短; (3) D^{**} 的激发截面比 D^* 的大; (4) D^{**} 与 D^* 的能级 E^{**} 和 E^* 满足 $E^{**} - E^* > E^*$; (5) D 不猝灭染料荧光, 不使染料变质.

采用激光束作辅助泵浦, 由于截面很小, 为了明显地改变 K'_{ST} 值, 影响激光器的性能, 要求 I_2 很强. 但是, 由于激光束的单色性和吸收过程强的共振性质, 有可能较准确地测定吸收截面 σ_{TS} , 这对于了解有关能级波函数的性质和染料分子结构是有益的.

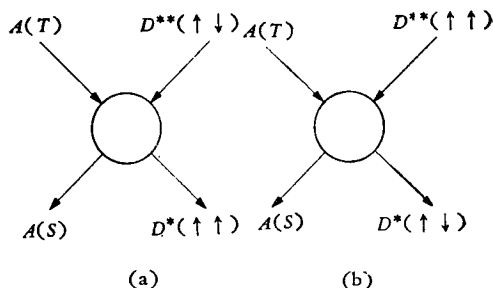


图 3 $T_1 \rightarrow S_1$ 的共振能量转移抽运

与染料溶液相比,在气相条件下,难于使用猝灭剂,但是,辅助泵浦源较易注入.因此,双泵试验可首先在气相染料激光器中进行.放电激励蒸汽染料激光器^[4]目前还处于原理性试验阶段.由于放电时 T_1 态的直接激发截面较大,三重态积累造成的吸收损耗更为突出,成为影响获得激光作用的主要因素之一.看来,探索 $T_1 \rightarrow S_1$ 抽运的途径,是这类激光器研制中值得注意的一个方向.

四、实验上的一些考虑

为了确定辅助泵浦对 K'_{ST} 的影响,可通过荧光测量确定 α . 为此,记录下无辅助泵浦和有辅助泵浦时荧光强度,设为 I 和 I' . 显然,它们与荧光量子效率之间有以下关系: $\phi = KI$ 和 $\phi' = KI'$. 将它们代入(15)式,并忽略 K_{SS} , 得

$$\alpha = \frac{I(1-\phi')}{I'(1-\phi)}. \quad (21)$$

由测得的 α 值可以估计出辅助泵浦对增益、阈值等的影响. 根据(5)式还可以确定辅助泵浦的抽运速率系数

$$K_{TS} = \frac{\alpha - 1}{\alpha \tau_T}. \quad (22)$$

在用调频激光束作辅助泵浦的情况下,可得 $T_1 \rightarrow S_1$ 的吸收截面

$$\sigma_{TS}(\lambda_2) = \frac{\alpha - 1}{\alpha \tau_T I_2}. \quad (23)$$

在双泵染料激光器中,为了实现连续运转,必须 $K'_{ST}\tau_T < \sigma_{em}/\sigma_T$. 这将要求充分强的辅助泵浦. 但是,当辅助抽运的速率系数足以同 $1/\tau_T$ 相比较时,就能有效地改善激光器性能和加宽激光脉冲. 输出激光脉冲的最大宽度 $t_{\max} \sim \sigma_{em}/\sigma_T K'_{ST}$.

我们初步讨论了在染料激光器中引进辅助的 $T_1 \rightarrow S_1$ 抽运,研制双泵染料激光器的可能性和途径. 采用双泵技术,有可能改善染料激光器性能,扩大激光染料种类,为了实现 $T_1 \rightarrow S_1$ 的有效抽运,还需要对有关的分子结构及激励机制进行深入的研究.

参 考 文 献

- [1] F. P. Schäfer, Dye Laser, New York (1973).
- [2] U. Ganiel et al., IEEE J. Quantum Electron., 11(1975), 881—892.
- [3] C. S. Willett, Introduction to Gas Lasers: Population Inversion Mechanisms, New York, (1974).
- [4] P. W. Smith, Optica Acta, 23(1976), 11; 901—909.

A DYE LASER WITH DOUBLE PUMPING SOURCE

LIU HUANG-FENG

(Department of Physics, Zhengzhou University)

WANG LIAN-CHIH

(Institute of Physics, Academia Sinica)

ABSTRACT

In this paper, the possibility of realization of a dye laser with double pumping source is discussed. The introduction of an auxiliary $T_1 \rightarrow S_1$ pumping is shown to be beneficial in lowering the laser threshold, increasing the gain and fluorescence quantum yield, and further extending the types of laser dyes and the frequency tuning range.