

DCM 荧光增强 C_3H_6O 受激拉曼散射(SRS)的 增益特性研究*

李振声¹⁾ 程 娟^{2)†} 王治华¹⁾ 罗时荣¹⁾ 杨经国^{1)†}

¹⁾ 四川大学物理系, 成都 610064)

²⁾ 中国工程物理研究院激光聚变中心, 绵阳 621900)

(2004 年 11 月 26 日收到, 2005 年 1 月 25 日收到修改稿)

报道荧光染料 DCM 对丙酮 SRS 的高效放大, 研究了 DCM 中 Stokes 波的增益特性. 改变 DCM 乙醇溶液浓度, 变化进入 DCM 的 Stokes 光强度以及抽运激光功率, 测量并分析了 Stokes 波增益与上述条件的关系. 研究结果发现, 当 DCM 浓度为 2×10^{-4} mol/L 时, Stokes 波获得最大功率增益达到 5.7, 抽运激光功率增加或进入 DCM 的 Stokes 信号增强时 Stokes 波输出增强, 但过强的 Stokes 信号将导致增益饱和.

关键词: 受激拉曼散射, 荧光增强 Stokes 波, 丙酮, DCM

PACC: 4265, 4265C, 3320F, 3350D

1. 引 言

受激拉曼散射(stimulated raman scattering, SRS)是激光频率调谐的重要物理基础之一^[1,2], 与染料调频激光器(dye laser, DL)和光学参量振荡器(optical parametric oscillator, OPO)相比, 使用 SRS 效应进行激光调谐具有许多独特的优点: 一定拉曼介质对应的特定拉曼激光频率, 狭窄的线宽和脉宽, 良好的方向性, 相对简单的设备和低廉的价格^[3,4]. 然而, SRS 的低转换效率限制了它的实际应用, 提高 SRS 转换效率的研究成为近年来调频激光领域的研究热点^[5-9]. Zhong 等^[10]提出使用染料荧光增强 SRS, 并在 CS_2 与若丹明 B 的混合溶液中实现了 CS_2 的 SRS 被若丹明 B 荧光增强, 但该方法需要 SRS 介质与荧光染料相互混溶. Cheng 等^[11]将拉曼介质和荧光染料分离, 在拉曼介质和荧光增益介质共线配置下实现了 CS_2 的 SRS 在 R6G 乙醇溶液中的高效放大. 然而, CS_2 为高增益拉曼介质, 自聚焦阈值低, 使用 CS_2 + R6G 系统难以获得稳定的拉曼调频激光输出. 丙酮(Acetone, C_3H_6O)是一种拉曼增益小于 CS_2 但性能稳定的拉曼介质, 它具有非常大的拉曼频移(2940

cm^{-1}). 使用 Acetone, 可望获得频移大且输出稳定的拉曼激光. DCM(4-(Dicyanomethylene)-2-methyl-6-(p-dimethyl-aminostyryl)-4H + pyran)是一种在 600—650 nm 波长范围具有强荧光增益的良好激光染料, 使用倍频 YAG 激光器(波长 532 nm)激发 Acetone 的 SRS 第一 Stokes 谱线波长(630 nm)与 DCM 荧光增益匹配^[12], 以 Acetone 为拉曼介质, 并以 DCM 染料放大 Acetone 所产生的 Stokes 波, 可望获得 Acetone 的 Stokes 波的高效放大输出. 本文以 Acetone 为 SRS 介质, 在 532nm 激光抽运下, 所产生的第一 Stokes 辐射用 DCM 进行放大, 在最佳实验条件下获得了高达 5.7 倍的功率增益. 详细测量和分析了 DCM 浓度、进入 DCM 的 Stokes 光强度以及抽运激光强度大小对 Stokes 波增益的影响. 研究结果对获得 630 nm 稳定的高增益拉曼激光输出, 对进一步理解荧光增强受激拉曼散射机理和建立实际拉曼激光调频技术具有重要意义.

2. 实验及主要结果

实验光路如图 1 所示. 由 Nd:YAG 激光器产生的 1.06 μm 激光经 KD*P 晶体倍频, 出射的 532nm

* 国家自然科学基金(批准号: 60078020, 60478044)资助的课题.

† E-mail: yangjingguo@hotmail.com

激光(脉冲宽度 10ns, 单脉冲能量 500mJ)经聚焦透镜(焦距 10cm)汇聚进入拉曼散射池(池长 10cm), 散射介质为分析纯丙酮(Acetone), 由 Acetone 产生的 Stokes 波以及从散射池出射的剩余 532nm 抽运激光进入装有 DCM 乙醇溶液的荧光染料池(池长 1cm). 在荧光染料池中, C_3H_6O 的 Stokes 波与荧光介质相互作用获得放大. 出射光谱由光栅多色仪色散, CCD 探测器及相关电路转换光谱信号为相应的电信号, CCD 输出模拟电信号经 A/D 变换为数字信号后输入计算机, 在专用软件控制下进行光谱的采集、分析和存储. 光电二极管(11)用于系统同步, 衰减片组(6)用于改变进入荧光染料池的 Stokes 信号和剩余抽运激光强度. 为避免光束在衰减片之间多次反射, 各片方位与入射光成一定倾角.

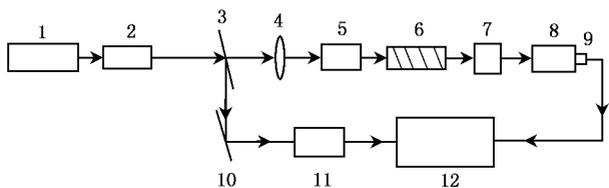


图 1 实验装置框图(1. 调 QYAG 激光器, 2. 倍频晶体, 3. 分束镜, 4. 透镜, 5. SRS 池, 6. 衰减片组, 7. 荧光池, 8. 光栅光谱仪, 9. CCD 探测器, 10. 全反镜, 11. 光电二极管, 12. 计算机)

用采样平均法(100 次平均)获取光谱, 以提高所采集光谱信噪比, 图 2(a)为未加入荧光染料池时由 Acetone 介质出射的 SRS 光谱, 从该谱图可见 532 nm 波长抽运激光远强于 SRS 的第一 Stokes(波长 630 nm)辐射强度. 图 2(b)为加入 DCM 荧光染料后从染料池出射的剩余 532nm 激光和第一 Stokes 辐射光谱图, 从图可见, 532nm 抽运激光几乎耗尽, 而 630nm 的 Stokes 辐射大大增强.

在改变 DCM 乙醇溶液浓度, 变化 532 nm 抽运激光强度以及改变由 Acetone 出射进入 DCM 荧光染料的 Stokes 信号强度等实验条件下, 测量和分析了 Stokes 波增益的变化. 设进入 DCM 之前和从 DCM 输出的 Stokes 辐射强度分别为 I_{si} 和 I_{so} , 定义荧光染料对 Stokes 波的功率放大因子 G 为

$$G = I_{so}/I_{si}, \quad (1)$$

以及 Stokes 波增益系数 g ,

$$g = \ln(I_{so}/I_{si})/(I_p \times L), \quad (2)$$

这里, I_p 是进入 DCM 乙醇溶液的抽运光强, L 为 DCM 染料池长. 测量和分析结果如下:

1) DCM 浓度变化对 Stokes 增益的影响

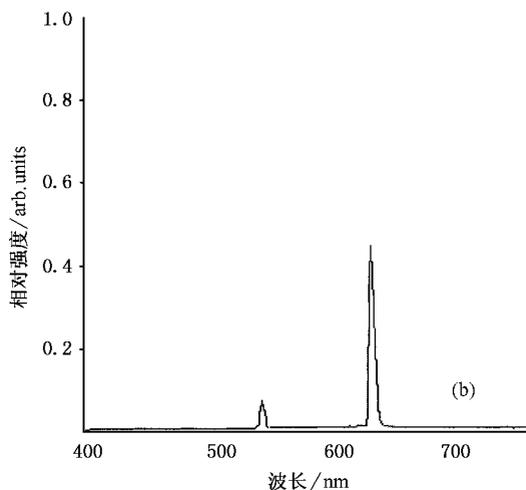
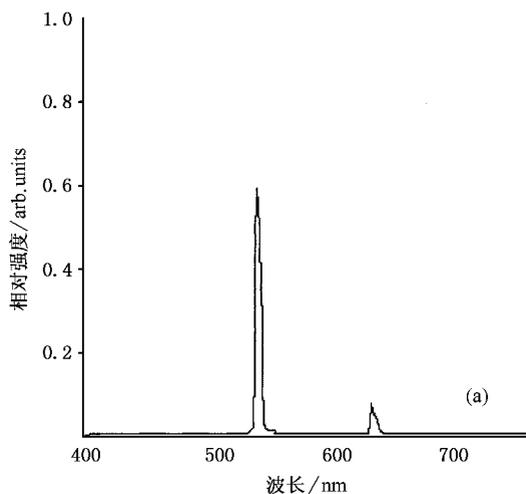
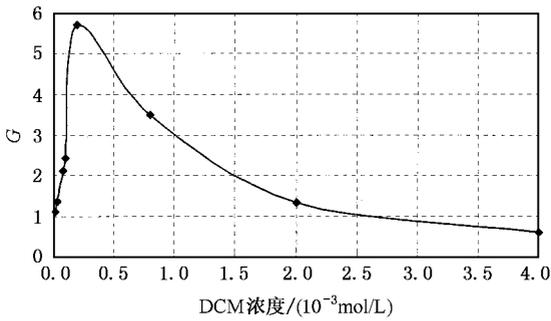


图 2 SRS 被 DCM 放大之前和放大之后的抽运光和 Stokes 波光谱 (a)未加入 DCM (b)加入 DCM

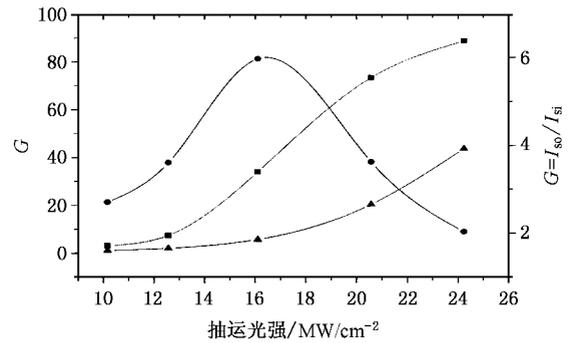
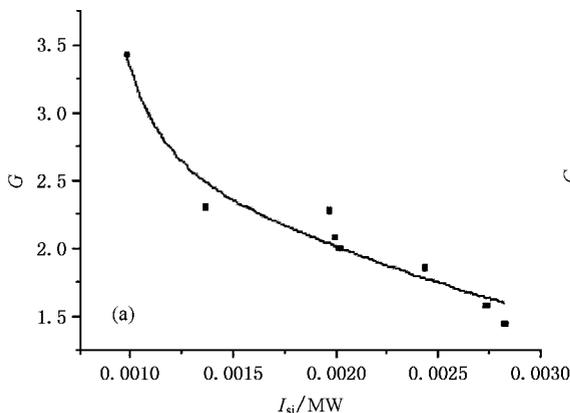
DCM 浓度从 2×10^{-5} mol/L 开始增加, Stokes 波增益增加, 当 DCM 浓度为 2×10^{-4} mol/L 时, Stokes 波获得了最佳增益, 继续增加 DCM 浓度, 染料对 Stokes 波的放大下降, 当浓度增加到 4×10^{-3} mol/L 时, 出射的 Stokes 波的相对强度已经小于进入 DCM 之前的 Stokes 波强度. 高浓度 DCM 中 Stokes 波增益下降的原因主要来源于 DCM 对抽运激光的过快消耗和对 630nm Stokes 波的自吸收. DCM 放大 Stokes 波的最佳浓度为 2×10^{-4} mol/L, 在此浓度下, DCM 对 Stokes 波的增益达到 5.69. 图 3 给出了不同 DCM 浓度对 Stokes 波功率放大因子 G 的影响, 图中横坐标为 DCM 乙醇溶液浓度, 单位 mol/L, 纵坐标为 Stokes 波功率放大因子. 实验中, 始终保持了抽运激光强度和进入 DCM 的 Stokes 波强度不变.

2) 抽运激光强度对 Stokes 功率放大的影响

图3 在不同 DCM 浓度下的功率增益 G

固定 DCM 浓度为 2×10^{-4} mol/L, 改变系统抽运光强, DCM 乙醇溶液在不同的抽运激光激励下对 Stokes 谱线增强作用不同. 图 4 表示放大后的 Stokes 波相对强度(实心矩形), 放大前 Stokes 波相对强度(实心三角形)和放大因子 G (实心圆)随进入 DCM 乙醇溶液的抽运光强度变化而变化的曲线. 横坐标为进入 DCM 的抽运光强, 左边纵坐标表示放大后和放大前的 Stokes 波相对强度, 右边纵坐标表示 C_3H_6O 第一 Stokes 波放大因子 G . 由图 4 可见 随着进入 DCM 的抽运光强度的增大, DCM 对 Stokes 波的增益增加, 当抽运激光功率达到 16 MW/cm^2 时, DCM 对 Stokes 波的增强达到最大($G = 5.97$); 当抽运光功率继续增加, 从 DCM 出射的 Stokes 波强度继续增大, 但 Stokes 波的增益下降, 这是因为增大系统抽运光强时, 由 Acetone 出射的 Stokes 波强度也增大(图 4 中的实心三角形所示), 强信号输入导致放大介质增益饱和.

3) DCM 荧光染料中 Stokes 信号强度对 Stokes 波增益的影响

图4 在不同抽运光强度下的功率增益 G

使用衰减片组改变进入 DCM 染料的 Stokes 信号光强, 保持进入到 DCM 乙醇溶液的抽运光强不变, 测量进入 DCM 之前和从 DCM 出射的 Stokes 强度, 由(1)式计算 DCM 对 Stokes 波的增益, 如图 5(a) 所示. 从图可见, 随入射 Stokes 波强度逐渐增加, 增益呈下降趋势(从 3.425 减小到 1.436, 保持 DCM 染料浓度为 2×10^{-4} mol/L).

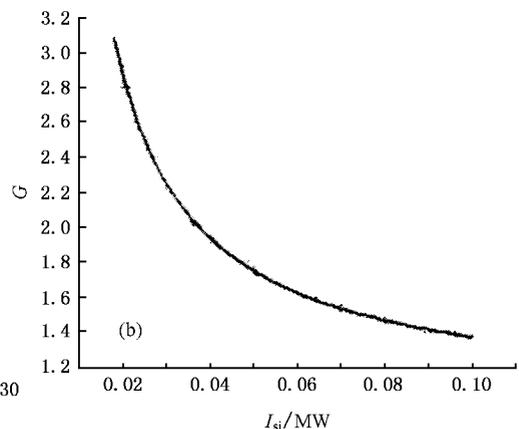
DCM 中 Stokes 增益随输入的 Stokes 信号强度增加而下降的原因可从激光放大的增益饱和现象得到解释. 当 Stokes 入射信号较强时, DCM 对 Stokes 波的增益 G 可表示为^[13]

$$G \approx 1 + \Delta n_0 L (2I_0 \tau), \quad (3)$$

其中 τ 为入射脉冲宽度, Δn_0 为反转粒子数. 由 $\Delta n_0 \approx gI_p$ (3) 式可写为

$$G \approx I_{so}/I_{si} \approx 1 + (gI_p L)(2I_{si} \tau). \quad (4)$$

注意到实验参数为 $I_p = 50 \text{ MW}$ 和 $\tau = 10 \text{ ns}$, 当取 $g = 0.015 \text{ cm/MW}$, 可得 G 随 I_{si} 变化的曲线如图 5(b) 所示. 图中 I_{si} 变化范围为 $0.018 \text{—} 0.1 \text{ MW}$, 间隔

图5 在不同入射 Stokes 波强度下的功率增益 G (a) G 和 I_{si} 的实验数据图; (b) (4) 式数值模拟的结果

0.001MW 取值. 由图 5(b)可见,增益随入射信号的增强而下降,其趋势与图 5(a)一致.

在 4 种不同 DCM 浓度下进行的实验获得大体相同的结果如图 6 所示. 图 6 中 4 条曲线对应 DCM 的不同浓度分别为 1×10^{-4} , 2×10^{-4} , 8×10^{-4} 和 10×10^{-4} mol/L, 增益因子由(2)式得出. 从图 6 可见,增益曲线下趋势随 DCM 浓度的增加而变陡,其原因主要来源于较高浓度 DCM 乙醇溶液对 630nm Stokes 波的自吸收. 从图还可见,强信号放大时 DCM 最佳浓度为 2×10^{-4} mol/L.

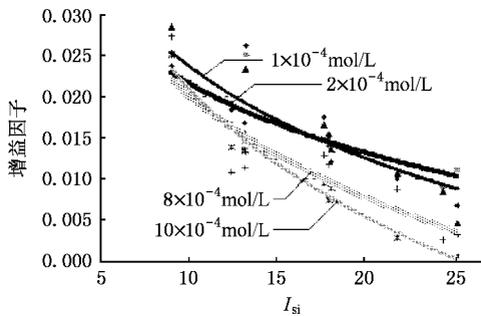


图 6 在不同染料浓度和不同 Stokes 信号强度下的增益因子

3. 结论及讨论

使用 Acetone 为拉曼介质,在 532nm 激光激发下产生 SRS 输出,利用激发 SRS 剩余的 532nm 激光激发 DCM 荧光,来自 Acetone 的第一 Stokes 波在 DCM 中获得高效放大,最大功率放大率达到 5.69. 改变 DCM 溶液浓度,变化 532 nm 抽运激光强度以及改变进入 DCM 荧光染料的 Stokes 信号强度均会对 Stokes 增益带来重要影响. 在较低的 DCM 浓度下,随 DCM 浓度的增加 Stokes 增益增加;当到达一定浓度后,再增加 DCM 浓度,增益将下降,据此可得到放大 Stokes

波的 DCM 最佳浓度 2×10^{-4} mol/L. 抽运光强的变化影响 DCM 对 Stokes 波的增益,当抽运光强逐渐增加,增益因子 G 持续上升,抽运光功率增大到 $16\text{MW}/\text{cm}^2$,DCM 对 Stokes 波的功率增强达到最大,当光强大于 $16\text{MW}/\text{cm}^2$ 时,增益下降. 小信号 Stokes 波入射时,Stokes 输出呈指数增长,随入射信号的变强增益饱和,功率增益下降.

SRS Stokes 谱线增强机理可作如下解释:在剩余抽运激光作用下染料分子被激发至亚稳能级而成为激活介质,Stokes 波通过该激活介质诱导上能级荧光粒子向下能级跃迁,产生受激辐射,并放大入射的 Stokes 光信号,从而使 Stokes 光得到增强. C_3H_6O 的一阶 Stokes 谱线波长 630nm 与 DCM 乙醇溶液的荧光增益范围(600—650nm)相匹配,且接近荧光包络峰值,故 C_3H_6O 的一阶 Stokes 波在 DCM 荧光染料中可获得显著放大.

DCM 的吸收谱带位于 400nm—600nm 范围,低浓度 DCM 染料吸收剩余抽运激光,放大 Stokes 波;高浓度 DCM 染料会引起抽运激光过快地衰减,同时,DCM 将对 Stokes 波产生自吸收,导致 Stokes 波放大效果减弱;当 DCM 乙醇溶液超过一定浓度,Stokes 波增益下降,甚至出现出射 Stokes 波弱于入射前 Stokes 波强度. 低强度剩余抽运激光在 DCM 中抽运染料分子放大 Stokes 波,逐渐增强剩余抽运光强度,染料吸收抽运光产生更多上能级荧光粒子使 Stokes 波增益增大,但过强的抽运激光可能导致高阶 Stokes 和 anti-Stokes 波激发,使 630nm Stokes 波增益下降.

染料荧光放大 SRS 理论和技术研究,以及由本文所报道的 DCM 放大的 Acetone 第一 Stokes 波(波长为 630nm)所产生的高强度、窄线宽、具有良好方向性的红色拉曼激光的实现,对 SRS 拉曼激光调频技术的进步和实用化具有重要意义.

[1] Fields M H, Poop J and Rr Chang K 1996 *Opt. Lett.* **21** 1457
 [2] Chen Y F 2004 *Opt. Lett.* **29** 1251
 [3] Brasseur J K, Repasky K S and Carlsten J L 1998 *Opt. Lett.* **23** 367
 [4] Meng L S, Roos P A, Repasky K S et al 2001 *Opt. Lett.* **26** 426
 [5] Kwol A S and Chang R K 1992 *Opt. Lett.* **17** 1262
 [6] Chen Y F 2004 *Opt. Lett.* **29** 1915
 [7] Tao Z M, Zhang Y C, Liu Y H 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 2589 (in Chinese) 陶宗明、张寅超、吕勇辉 2004 物理学报 **53** 2589]

[8] Pu X Y, Yang R and Wang Y L 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 2509 (in Chinese) [普小云、杨睿、王亚丽等 2004 物理学报 **53** 2509]
 [9] Li C Y and Zhang L J 2002 *Acta Phys. Sin.* **51** 814 (in Chinese) [李昌勇、张临杰 2002 物理学报 **51** 814]
 [10] Zhong X Q, Yang J G, Ha Y Q et al 2000 *High Power Laser and Particle Beams* **4** 172
 [11] Cheng J 2005 *Opt. Commun.* **26** 141
 [12] Hammond P R 1979 *Opt. Commun.* **29** 331
 [13] Arek F T, Schultz-DuBois E O 1980 *Book of Laser* (Science Press)

Investigation of amplification characteristics of SRS in acetone enhanced by DCM dye fluorescence^{*}

Li Zhen-Sheng¹⁾ Cheng Juan^{2)†} Wang Zhi-Hua¹⁾ Luo Shi-Rong¹⁾ Yang Jing-Guo^{1)†}

¹⁾ Department of Physics , Sichuan University , Chengdu 610064 , China)

²⁾ Research Center of Laser Fusion , China Academy of Engineering Physics , Mianyang 621900 , China)

(Received 26 November 2004 ; revised manuscript received 25 January 2005)

Abstract

The efficient amplification of stimulated Raman scattering in Acetone enhanced by dicyanomethylene(DCM) dye fluorescence and the amplification characteristics are reported in this paper. Under the various concentrations of DCM , various intensities of input Stokes signal and various pump laser intensities , the input and output Stokes wave intensities are measured in the experiment. At the concentration of 2×10^{-4} mol/L for DCM solution in ethanol , the biggest enhancement factor of Stokes wave reaches 5.7. The higher the intensity of pump laser or input Stokes signal , the higher the intensity of output Stokes wave , and if the input Stokes is too high , the enhancement coefficient may decrease , the so-called enhancement saturation.

Keywords : stimulated Raman scattering(SRS) , enhancement of stokes by fluorescence , C_3H_6O , DCM

PACC : 4265 , 4265C , 3320F , 3350D

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China(Grant Nos.60078020 ,60478044).

[†]E-mail : yangjingguo@hotmail.com