

验证双光子吸收用于光脉冲宽度测量

周达君 程 捷 李润华

(中山大学激光与光谱学研究所, 广州 510275)

摘 要 介绍一种基于自相关函数概念, 用双光子吸收法测量纳秒光脉冲宽度的方法, 实验结果与传统方法符合较好. 正致力于把此方法推广到皮秒量级的脉宽测量中.

关键词 双光子吸收, 自相关函数, 超短光脉冲

分类号 O433.54, O436.2

激光脉冲的时间宽度测量一般是通过快速的探测电子仪器. 例如光电二极管配合示波器可以测量纳秒量级的光脉冲; 用条纹照相机可以测量皮秒量级的脉冲, 其探测极限取决于条纹相机的分辨率, 目前可达 2 ps 水平. 短于皮秒量级的光脉冲, 只能用自相关函数, 借助于倍频晶体来进行探测^[1]. 两种方法都有一定的局限性. 特别是条纹照相机, 十分昂贵, 目前还未达到飞秒量级; 自相关函数法是目前唯一用于飞秒量级测量的方法, 但要依靠二次谐波产生, 必须选取与待测波段相配合的晶体, 这不是总能做得到的. 尽管发展了多种基于双光子荧光的照相法测量超短光脉冲的技术^[2, 3], 但技术操作烦琐并且误差大.

本工作是旨在发展一种新的技术, 采取自相关函数的概念, 但避过二次谐波晶体和照相法, 通过双光子吸收后原子或分子放出的光电流信号强度与待测光脉冲时延之间的关系, 也就是光电流信号(或其他形式的信号)所反映出来的光脉冲自相关函数去确定光脉冲的宽度. 如果待测脉冲是二个具有相同形状和脉宽但不同频率的光脉冲, 则可以实现完全无背景的测量.

1 理论计算

我们用以实现双光子吸收的物质是装在一个空心阴极放电管中的 Ne 原子, 并选择了其中的 $1s_5$ 能级和 $4d_1^1$ 能级作为双光子共振吸收能级. 基态的中性 Ne 原子受电子激励, 被碰撞激发到 $1s_5$ 态. 然后, 处于 $1s_5$ 态的原子受到两束不同频率的两个具有相同形状和时间宽度的光脉冲所激励, 吸收不同频率的二个光子后共振跃迁到 $4d_1^1$ 能级上. 处于 $4d_1^1$ 能级上的原子具有比较大的电离几率, 于是随着激光的照射, 将产生一个光电流脉冲.

收稿日期: 1994-11-05 周达君, 男, 52 岁, 教授

下面是有关的双光子吸收的动力学过程.

图 1 是有关的双光子吸收的简化的 Ne 原子能级图.

图中 G 代表 Ne 原子的基态, 1 代表双光子共振跃迁的下能态即 $1s_5$ 能级, 2 代表双光子共振跃迁的上能态即 $4d_1^+$ 能级, + 代表 Ne 原子的电离态.

1 态和 2 态的粒子动力学过程可以描述为

$$\frac{d(\Delta n_1)}{dt} = \sum_j \cdot \gamma_{j1} \Delta n_j - (n_1 - n_2) \cdot \sigma_{12} \cdot F_{12}(t, \tau) \quad (1)$$

$$\frac{d(\Delta n_2)}{dt} = \sum_j \gamma_{j2} \Delta n_j - (n_2 - n_1) \cdot \sigma_{12} \cdot F_{12}(t, \tau) \quad (2)$$

其中

$$F_{12}(t, \tau) = I_1(t_1 t_0) \cdot I_2(t_1 t_0 + \tau);$$

$$I_1(t, t_0) = I \cdot \sqrt{4 \cdot \ln 2 / \pi} / \Delta T \cdot e^{-4 \cdot \ln 2 (t-t_0)^2 / \Delta T^2}$$

即假设光脉冲为一个强度为 I 的高斯函数. 这个假设在大多数场合下是合理的.

γ_{ji} 是无光照射时跃迁 $j \rightarrow i$ 的自发跃迁系数; σ_{ij} ($= \sigma_{ji}$) 是跃迁 $i - j$ 的光学截面; n_i 则是 i 能级上的布居数密度.

我们继续分析 1 态和 2 态布居数密度的特点:

(1) 由于能级 $1s_5$ 是 Ne 原子的亚稳态, 在稳定放电时, 其上的布居数很大, 并且当单脉冲激光能量足够小, 远未达到饱和吸收时^[4, 5], $\Delta n_1/n_1 \approx 0$ 即可近似认为 $n_1 = n_1^0$ 为常数.

(2) Ne 原子的高激发态 $4d_1^+$ 能级位置很高, 距离电离限只有 0.954 eV, 任何一个可见光的光子能量(大约 2 eV) 都超过这个数值, 所以如果由于气体放电, 而使得 $4d_1^+$ 态上存有布居数, 则在外界光脉冲照射时会产生相应的光电流脉冲, 但在实验中, 以非共振的光脉冲激发 Ne 原子并不能观察到相应的信号. 我们认为该能级的布居数在稳定放电时是很小的, 基本为零.

(3) 如果先用双光子共振激励, 使 Ne 原子从 $1s_5$ 能级共振跃迁到 $4d_1^+$ 能级, 再以第三激光脉冲激励样品, 则应该得到增强的光电流信号. 但在实验中也未得到这种增强的现象. 结合第(2)点实验现象, 我们认为, 被共振激励到 $4d_1^+$ 态的原子在该能级停留的时间极短, 刚一到达就被电子碰撞和激光的进一步激励而进入电离态. 这是 $4d_1^+$ 态的布居数被移走的主要渠道, 而通过辐射方式回到其他较低能级的比例相对来说是很微弱的, 也就是说 $\gamma_{12} \approx 0$. 这种情况, 也同样出现在其他类似的工作中^[4, 5]. 从数学角度, (2) 式可以写为

$$\frac{d(\Delta n_2)}{dt} = \sigma_{12} \cdot F_{12}(t, \tau) \cdot n_1^0 \cdot \sigma(t) \quad (3)$$

所以,
$$\Delta n_2(t) = \int \sigma_{12} \cdot F_{12}(t, \tau) \cdot n_1^0 \cdot \delta(t) \cdot dt = \sigma_{12} \cdot F_{12}(t, \tau) \cdot n_1^0 \quad (4)$$

(4) 式表示 2 态的布居数与 $F_{12}(t, \tau)$ 函数之间是瞬时响应的. 这是 Ne 原子 $4d_1^+$ 能态, 在气体放电的特定条件下表现的性质. 由于 n_2 的变化, 引起光电流的改变, 于是可以观察到

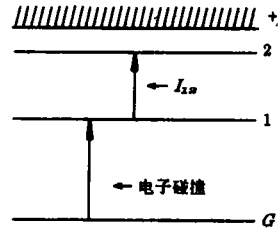


图 1 简化的氖原子能级图
Fig. 1 The simplified levels of atom neon

一个相应的光电流脉冲信号 $V(t, \tau)$.

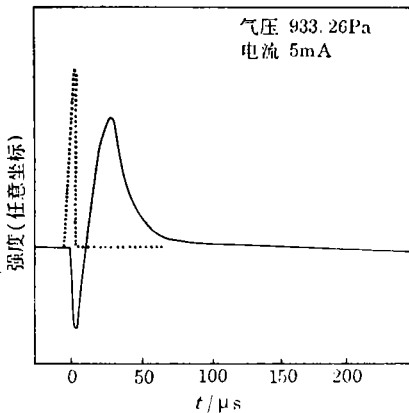
关于光电流光谱学中的时间特性问题已有较成熟的理论和实验结果^[6]. 研究表明, 入射光脉冲形状和供电回路中的光电流信号的脉冲形状并不相同. 光电流信号由二个峰组成, 如图 2 所示. 一个是窄而尖的负峰和一个较平坦的正峰. 前者是由于中性 Ne 原子被电离后产生的电子对光电流的贡献, 它对入射光脉冲的响应很快, 几乎是同时的; 后者是由于离子的复合过程而产生, 是一个被滞后了的较缓慢的变化过程^[7]. 尽管不同的能级间激励以及不同的放电电流都会导致光电流信号波形的变化, 但由电子电流效应形成的负峰位置总是固定的, 而由离子复合形成的正峰位置, 在某些能级间跃迁会改变, 在另一些跃迁中则不变化. 如果所选取的有关能级, 放电电流和气体压力等参数都不变, 则光电流信号的时间特性应是确定的, 这完全由放电管中原子各相关能态之间的激发、电离、复合、弛豫等内在的动力学过程所决定. 而光电流信号脉冲的峰值的大小很显然是正比于入射的光脉冲的峰值. 图 2 中还画出了入射自相关光脉冲的位置, 示意出与光电流信号的时间关系. 可看到, 后者较前者延时和展宽达到 μs 的时间尺度. 我们在示波器上所监视到的也正是图中描绘的光电流波形. 自相关光脉冲宽度等于或小于 10^{-8} s 量级, 与光电流信号脉冲相比, 相当于一个 δ 函数.

在实验中, 光电流信号的获取是借助耦合回路. 耦合回路电容 ($C = 140\text{ pf}$) 和 BOXCAR 的输入阻抗 ($r = 10\text{ k}\Omega$) 组成. 耦合回路的时间常数为

$$\tau_{TC} = 2\pi \cdot C \cdot r \approx 8\ \mu\text{s}$$

这个时间常数小于光电流信号脉冲的时间宽度, 可以认为, 在 BOXCAR 的输入电阻上很好地响应了光电流信号的时间变化. 所以, 我们将 BOXCAR 的选通门 (宽度 5 ns) 设置在光电流信号脉冲的负峰位置上, 随着入射的双光子之间的时间延时, 测出相应的光电流信号峰值幅度变化.

用二次谐波法测量光脉冲宽度技术中, 测量的是自相关函数的积分结果. 本工作并



2 自相关光脉冲(虚线)与光电流信号(实线)关系图

Fig. 2 The Auto-correlation light pulse (dashed line) and OGS (solid line)

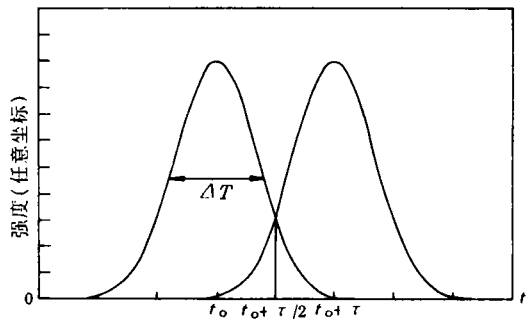


图 3 高斯函数的自相关图

Fig. 3 The Auto-correlation of Gaussian function

不采用信号积分的探测方法, 而只采用选通门, 仅仅测量光电流信号的峰值变化规律. 所测到的 $V(t, \tau)$ 峰值正比于 $F(t, \tau)$ 峰值的变化. 容易证明, 本工作的测量方法等效于自相关函数测量法.

(1) 假设光脉冲波型为时间的高斯函数

$$I(t, t_0) = Ae^{-a(t-t_0)^2}$$

(2) 其自相关函数为

$$R(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} I(t, t_0) \cdot I(t, t_0 + \tau) \cdot dt = \int_{-\infty}^{+\infty} A^2 \cdot e^{-a(t-t_0)^2} \cdot e^{-a(t-t_0+\tau)^2} \cdot dt = R(0) \cdot e^{-a\tau^2/2}$$

其中 $R(0)$ 为一个与 τ 无关的常数.

(3) 再考察 $V(t, \tau)$.

设 $F_{\max}(t, \tau)$ 为 τ 固定时 $F(t, \tau)$ 在时间轴上的最大值. 此时的 t 应取为 $t = t_0 + \tau/2$, 如图 3 所示.

由于 $V(t, \tau)_{\max} \sim F_{12}(t, \tau)_{\max} = [I(t, t_0) \cdot I(t, t_0 + \tau)]_{\max}$

所以 $V_{\max}(t, \tau) = A^2 \cdot e^{-a(t-t_0)^2} \cdot e^{-a(t-t_0-\tau)^2} \Big|_{t=t_0+\tau/2} = F_{\max}(t, 0) \cdot e^{-a\tau^2/2}$

其中 $F_{\max}(t, 0)$ 为一个与 τ 无关的常数. 可见, $R(\tau)$ - τ 曲线和 $F_{\max}(t, \tau)$ - τ 曲线归一化后为同一曲线.

2 实验和结果

本工作原理上与我们过去的工作方案相似^[4, 5], 不同的是在双光子泵浦的二路光脉冲间引入延迟线. 二路激光来自两台结构相同的染料激光器(德国 LAMBDA 公司). 两激光的波长分别为 614.506 nm 和 597.307 nm, 它们按预置的相互时延间隔, 沿同一方向经一透镜入射到含 Ne 原子的空心阴极灯去. 光电流信号从空心阴极灯的供电电路中通过电容耦合取出, 送到一个 BOXCAR 数值平均器处理. BOXCAR 的选通门设置在光电流脉冲的峰值处. 由于所选取的二个激光波长并不与任何二个 Ne 原子能级共振, 所以, 遮挡其中任何一束激光, 都观察不到任何光电流信号, 只有二束激光同时作用时, 才可测到信号. 每一束激光的功率均为 0.1 mJ. 图 4 是测量结果. 其中小方块为实测数值点, 实线为计算机拟合曲线. $R(\tau)$ 为自相关函数, $I(t)$ 为从 $R(\tau)$ 反推出的激光脉冲的时间轮廓. 从 $I(t)$ 曲线, 我们可求得光脉冲的时间宽度为 $\Delta T = 16.0$ ns.

为了验证结果的正确性, 我们对激光脉冲作了实时测定, 用一快速光二极管接收激光脉冲送入 BOXCAR 处理, 用 2 ns 的选通门扫描整个光脉冲轮廓, 记录激光脉冲的真实波形如图 5.

比较图 4 和图 5, 我们看到实际的光脉冲轮廓并非对称, 而光电流光谱自相关方法得到的结果却总是对称的, 这与二次谐波自相关函数技术所得结果一致. 此外, 实测结果表明光脉冲曲线相对地呈现出较大的局部的起伏, 而自相关方法反映的是光脉冲强度分布的整体轮廓, 局部变化不容易反映出来. 实测光脉冲轮廓不对称原因, 我们认为这是由于准分子激光器的脉冲放电电路特性引起. 对准分子激光器的输出光脉冲进行直接的观测, 也获得相似的结果.

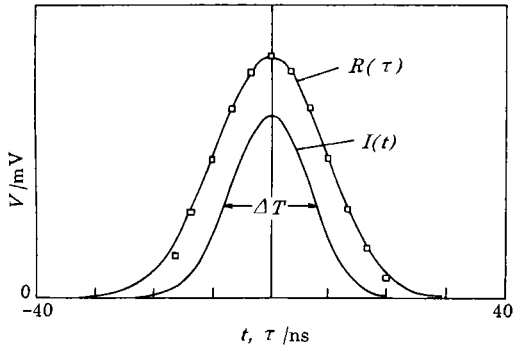


图 4 计算机拟合自相关曲线与相应的光脉冲轮廓
Fig. 4 The auto-correlation curve and the derived light pulse profile

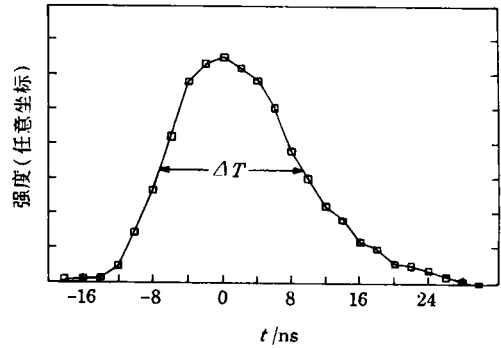


图 5 实测光脉冲轮廓
Fig. 5 The light pulse profile measured directly

从图 5 曲线拟合中, 估算激光脉冲宽度 16.8 ns. 然而实验中, 光电流信号虽然经过 BOXCAR 的多次平均, 仍然有 5% 左右的抖动, 相应的最大读数误差为 1 ns, 即实测结果应为 (16 ± 1) ns 在这个误差范围内, 与自相关方法还是很好地符合的.

3 讨 论

本工作采用不同频率的两个光脉冲实现双光子吸收可以进行完全没有背景的光脉冲宽度自相关测量. 可以用一已知宽度的光脉冲与待测光脉冲共同实现双光子吸收, 从而可求待测光脉冲宽度.

如果两个光脉冲为同一个脉冲分离所得, 则它们具有相同频率和相同波形, 仍然可以采用本方法测量. 由于双光子吸收的物质很多, 而方法也可以多样性, 探测的信号不一定局限于光电流, 而可以是荧光信号, 光声信号或者是其他方式的信号, 取决于采用的激光光谱学方法. 吸收物质和光谱方法的多样性是本方法的最大优点. 但是, 由于本工作中所探测的只是间接的光电流信号, 其中必然会引入测量电路上的误差, 是本工作的最大局限性. 本工作只在纳秒时间尺度内进行, 我们期待着能够推广应用于皮秒脉宽的测量中.

参 考 文 献

- 1 Weber H P. Method for pulsedwidth measurement of ultrashort light Pulse generated by phase-locked lasers Using nonlinear Optics. J Appl phys, 1976, 38(5): 2231 ~ 2234
- 2 Giordmaine J A, Rentzepis P M, Shapiro S L. Two-photon excitation of fluorescence by picosecond light pulses. Appl phys Lett, 1976, 11(7): 216 ~ 218
- 3 Drexhage K H. Multiphoton excitation of fluorescence in standing light waves and measurement of picosecond pulses. Appl phys Lett 1969, 14(10): 318 ~ 320
- 4 周达君, 谢汉伟, 余振新. Ne 原子双光子吸收截面的实验测定. 中山大学学报(自然科学版) 1991, 30(1): 34 ~ 39
- 5 周达君, 程捷, 李润华. Ne 原子 2P_{1/2} 能级寿命测定. 中国激光, 1994, 21(9): 739

- 6 Erez G, Lavi S, Miron E. A simplified theory of the optogalvanic effect. IEEE Journal of Quantum Electronics, 1979, QE-15(12):1328 ~ 1332
- 7 Thomas Caesar, Jean-Louis Heully. Experimental evidence of non-inverted population in a neon hollow-cathode. Optics communications, 1983, 45(4):258 ~ 260

Measurement of Light Pulse Width by Two-photon Absorption

Zhou Dajun* Cheng Jie Li Runhua

Abstract The method of two-photon absorption for measuring ns light pulse width is presented, The pulsedwidth measured in this experiment is well in correspondence with that measured by the traditional method. It is expected that the new method is suitable for the measurement in ps domain.

Keywords two-photon absorption, auto-correlation function, ultrashort light pulse

=====

· 简 讯 ·

介观物理理论文集出版

1994年12月第一届全国介观物理理论研讨会于广州中山大学举行。会后，由李华钟、周义昌主编的《介观物理理论》收录了研讨会的15篇研究论文，最近已由中山大学学报编辑部编辑出版。

该文集既有综述介观物理领域新近的进展，又有交流国内及香港地区有关介观物理的最新研究成果，同时也介绍了国内外介观物理实验的研究现状。

该文集得到中山大学高等学术研究中心基金会(香港)赞助出版。邮购请与中山大学高等学术研究中心联系。

(张 文)

* Institute of Laser and Spectroscopy, Zhongshan University, Guangzhou 510275