

共振耦合双波受激喇曼散射的实验研究

赫光生 程与旦 周福新 余曷鲲

王福贵 刘敏 刘颂豪

(中国科学院上海光机所)

摘要: 利用两束波长不同的毫微秒量级强脉冲激光同时辐照方解石或苯样品, 当两入射光频率差正好与样品喇曼跃迁频率发生共振时, 可观察到一种新形式的双波受激喇曼散射现象。本文简要报导上述现象产生的条件、特点和实验规律性, 并对产生机制给出解释。

Experimental study on resonance-coupled two-wave stimulated Raman scattering

He Guangsheng, Cheng Yudan, Zhou Fuxin, Yu Bingkun

Wang Fugui, Liu Min, Liu Songhao

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

Abstract: A new form of two-wave SRS is discovered using two nanosecond-pulsed laser beams of different frequencies to irradiate calcite and benzene when the frequency-difference of the incident beams is in resonance with the Raman transition frequency of the sample. The conditions for this phenomenon and characteristics are investigated experimentally. An essential explanation is the resonance-coupled two-beam self-focusing.

一、实验装置

整个实验装置和布局大体上与一般 CARS 实验基本相似^[1], 并由图 1 示意性表示。其中射入样品的一束光波长 $\lambda_1 = 5320$ 埃, 它是由重复频率电光调 Q 之 YAG:Nd³⁺ 激光振荡-放大器的输出, 经 KDP 晶体倍频后而形成的, 光束直径约 3 毫米, 发散角约 1 毫弧度, 脉宽约 8~10 毫微秒, 谱宽约 0.13 厘米⁻¹, 重复率 1~5 次/秒。另一束是波长

在 $\lambda_2 = 5646$ 埃附近可调谐的黄色激光, 它是由另外一束绿色激光泵浦的若丹明 6G 染料激光器发出的, 光束直径 3 毫米, 脉宽约 5~6 毫微秒, 谱宽约 0.42 厘米⁻¹, 重复率 1~5

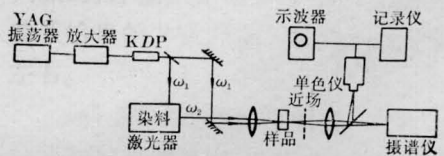


图 1 实验装置示意简图

收稿日期: 1983 年 1 月 24 日。

次/秒。两光束经焦距 10 厘米或 15 厘米的透镜聚焦后, 可以 $0\sim 6^\circ$ 的会聚交叉角度同时重合聚焦在待研究的喇曼散射介质(方解石晶体或者苯液体)中, 实验采用的样品通光厚度约为 1 厘米。实验测量的项目分别包括: λ_1 和 λ_2 光束单独入射时产生受激喇曼散射(SRS)的阈值; λ_1 和 λ_2 光束同时入射并产生双波耦合 SRS 时的阈值、场图分布、频谱结构、脉冲时间特性等。受激散射阈值测量采用灵敏度为 0.01 毫焦耳的能量计进行, 场图分布采用彩色分光照相方法记录, 脉冲时间特性采用强流光电管和示波器组合系统进行测量(时间分辨小于 1 毫微秒), 辐射频谱特性采用 31WI 型 1 米单光栅摄谱仪分析和记录。实验还采用一台 WDG-500I 型半米单光栅单色仪, 用来对所产生的共振耦合 SRS 不同频谱成分进行选择检测, 例如了解它们的脉冲时间特性, 或者它们的信号强度随两入射光束差频调谐改变而变化的同步扫描曲线记录等。

二、现象的产生条件和主要特点

波长为 λ_1 和 λ_2 的两个光束单独入射并超过一定阈值后, 可分别产生各自的 SRS。测量表明, 本实验条件下两束光分别单独入射的 SRS 的阈值基本相同。例如当聚焦透镜焦距为 10 厘米, 沿光轴方向通过厚约 1 厘米方解石晶体, 按能量计阈值均为 0.5 毫焦耳, 按样品内焦点区功率密度计均为 0.5×10^9 瓦/厘米²(这里在估算中忽略了两入射光的脉冲时间和发散角的差别)。在两入射光脉冲能量低于上述阈值, 两光束单独入射均不能产生 SRS, 但两光束同时重合入射, 满足差频喇曼共振条件, 光脉冲能量在高于该阈值的一半时, 则可观察到两光束各自受激喇曼散射的同时产生, 亦即共振耦合双波 SRS 效应的出现。具体说来, 该效应的产生条件和主要特点为:

① 两入射光束应满足时间同时和空间重合作用条件;

② 两入射光束应满足差频喇曼共振条件, 亦即 $\omega_1 - \omega_2 = \omega_r$, 这里 ω_r 为散射介质的喇曼跃迁频率。

③ 两光束在样品内的会聚交叉角允许在较大范围内(实验中为 $0\sim 6^\circ$) 变化而不影响该效应的出现, 亦即过程不要求满足相位匹配条件;

④ 共振耦合作用的结果, 是相当于使得两入射光束各自的受激喇曼散射的阈值降低一倍左右(λ_1 与 λ_2 光束以约 2° 交角通过方解石样品)。

显然, 上述第 ①、② 两个条件与一般 CARS 或 CSRS 过程的要求相同, 但第 ③ 个特点则与 CARS 及 CSRS 过程有本质上的区别。第 ④ 个特点以及第 ①、② 两个条件则又与普通受激喇曼散射有所区别。

三、实验测量结果

实验上主要是针对方解石样品进行了定性观察和定量测量, 用液体苯样品所获实验结果在定性上与方解石样品情况基本相同。

(1) 耦合受激散射频谱测量。图 2 给出了用 31WI 型 1 米光栅摄谱仪拍得的方解石样品共振耦合 SRS 的光谱分光照片。其中图 2(a) 为 $\lambda_1 = 5320$ 埃与 $\lambda_2 = 5646$ 埃两光束在低于其各自单波 SRS 阈值而又高于其阈值一半时, 单独通过样品后拍得的光谱图, 可看出它们均不能产生受激喇曼散射; 图 2(b) 为同样条件下两束光同时通过样品后拍得的光谱图, 可看到共振耦合双波 SRS 的出现, 其中包括了以 λ_1 光束为中心的一级斯托克斯谱线 $S_1 = 5646$ 埃、二级斯托克斯谱线 $S_2 = 6015$ 埃以及一级反斯托克斯谱线 $AS_1 = 5029$ 埃; 此外还同时可看到以 λ_2 光束为中心的一级斯托克斯谱线 $S_2 = 6015$ 埃。图 3 为同样对比实验条件下针对苯样品获得的光谱

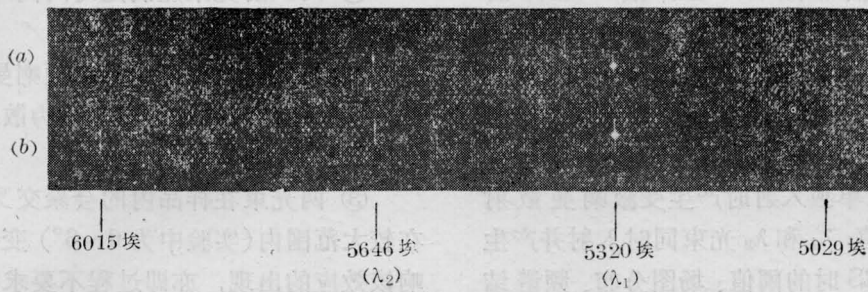


图 2

(a) λ_1 与 λ_2 光束单独通过方解石样品后, 两次曝光进入摄谱仪; (b) λ_1 和 λ_2 光束同时通过方解石样品后, 按不同入缝高度同时射入摄谱仪

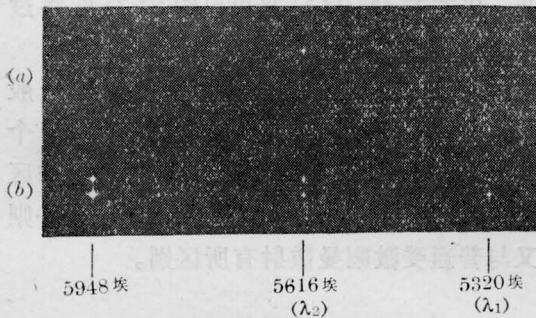


图 3 苯样品(说明同图 2)

图照片。

(2) 耦合受激散射场图分布测量。图 4 为两入射光同时通过方解石样品并产生共振耦合 SRS 时的辐射近场图彩色照片(采用 Kodak II 型彩色负片), 两入射光会聚角约 2° 左右。在此条件下, 可出现 CARS 和 CSRS 辐射, 与共振耦合双波 SRS 辐射并存的情况(见彩色插页)。图 4 中心左边较大的绿色光斑为 λ_1 光束近场分布, 右边较大的黄色光斑为 λ_2 光束近场分布; 绿色光斑左侧的月牙状蓝色光斑为一级 CARS 辐射分布, 而黄色光斑右侧的月牙状红色光斑为一级 CSRS 辐射分布; 绿色光斑中心较小的黄色光斑为共振耦合作用导致的以 λ_1 光束为中心的一级斯托克斯受激散射, 而围绕着绿色光斑的较大的红色空心圆环, 是以 λ_1 光束为中心的二级斯托克斯受激散射; 其他的耦合受激散射光谱组分受上述较强光场图的掩盖而在照片上看不出。图 5 为在与图 4 同样条

件下, 使经过样品后的总输出光束经过一个红色滤光片(Blazers, B-40 型 616)后拍得的近场图分布彩色照片(见彩色插页); 其中图中心右边的实心红色光斑为以 λ_1 光束为中心的一级斯托克斯受激散射, 而图中心左边的红色实心光斑和空心圆环均是以 λ_2 光束为中心的二级斯托克斯受激辐射——其中实心圆斑可认为是由纯粹的级联受激散射过程产生, 而空心圆环则可认为是由 λ_1 光以及它所产生的 S_1 受激散射光按四波混频机制产生。如果 λ_1 和 λ_2 两入射光夹角很小 ($<0.5^\circ$) 或很大 ($>4^\circ$), 则图 4 与图 5 中的月牙状 CARS 与 CSRS 辐射不再出现, 但共振耦合双波 SRS 辐射仍然存在。

(3) 耦合受激散射共振扫描测量。为表明耦合双波受激喇曼散射的共振选择特性, 图 6 给出了方解石样品中耦合受激散射现象出现时, 以 λ_1 光束为中心的二级斯托克斯受激散射光强, 随两入射光频率(波长)差调谐改变而变化的扫描曲线。由图中可看出, 只有当两入射光频差与样品喇曼跃迁频率发生共振时, 才能产生明显的耦合双波 SRS; 图中曲线给出的共振峰值一半处的线宽约 0.5 埃左右。

(4) 脉冲时间特性测量。采用快速光电元件和示波器系统, 分别测量了入射光、单波 SRS 以及共振耦合双波 SRS 不同光谱成分的脉冲持续时间特性, 测量结果如表 1 所示。

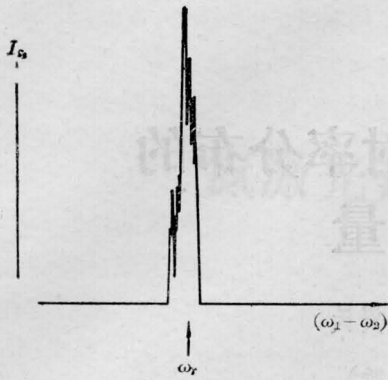


图6 耦合双波SRS所产生的以 λ_1 光束为中心的 S_2 线光强相对于两入射光差频调谐变化曲线

由表1可看出,单束光普通SRS脉冲时间宽度基本上由入射光脉冲宽度所决定;而共振耦合双波SRS的脉冲宽度,则基本上由两入射光脉冲的时间重合宽度所决定。在本实验条件下,相当于是由持续时间较短的 λ_2 光脉冲时间宽度所决定。

表1 入射光与受激喇曼散射光脉冲的时间宽度(单位:毫微秒)

	入射前	单波SRS S_1 线	单波SRS S_2 线	双波SRS S_1 线	双波SRS S_2 线
λ_1 光束 为中心	8~10 (5320 埃)	7~8 (5646 埃)	5~7 (6015 埃)	4~5 (5646 埃)	2.5~3 (6015 埃)
λ_2 光束 为中心	5~6 (5646 埃)	~4 (6015 埃)		3~4 (6015 埃)	

四、现象产生机理的物理解释

我们认为比较合理的一种解释是共振耦合双波自聚焦过程。众所周知,在通常采用单波入射激励产生SRS的早期实验研究中,人们就发现散射介质内发生的自聚焦过程会导致入射光束截面收缩和局部光强显著增

大,从而引起喇曼增益增大以及相应的SRS阈值降低。在本文叙及的实验条件下,频率分别为 ω_1 和 ω_2 两光束差频喇曼共振作用的结果,使散射介质的三阶非线性电极化率 $\chi^{(3)}$ 的虚部与实部都有可能得到共振增强,其中 $\chi^{(3)}$ 实部的增强将导致介质在 ω_1 与 ω_2 频率处同时产生较大的折射率变化。我们的分析表明^[2],双波差频喇曼共振耦合作用下所引起的两入射光频率处的折射率共振增强变化可表示为如下形式:

$$\left. \begin{aligned} \Delta n(\omega_1) &\propto I(\omega_2) \frac{\omega_r - (\omega_1 - \omega_2)}{[\omega_r - (\omega_1 - \omega_2)]^2 + \Gamma^2} \\ \Delta n(\omega_2) &\propto I(\omega_1) \frac{\omega_r - (\omega_1 - \omega_2)}{[\omega_r - (\omega_1 - \omega_2)]^2 + \Gamma^2} \end{aligned} \right\} \quad (1)$$

式中 ω_r 为介质的喇曼跃迁频率, 2Γ 为普通喇曼散射谱线宽度, $I(\omega_1)$ 和 $I(\omega_2)$ 分别为两入射光束在样品内共同作用区域的光强。

由公式(1)可得出两点重要的物理结论:首先,在给定的入射光强条件下,当 $(\omega_1 - \omega_2)$ 值从低频方向向 ω_r 趋近时,可引起 ω_1 与 ω_2 两频率处折射率值较大的增加,从而有可能引起入射光自聚焦;其次,当两入射光强 $I(\omega_1) \approx I(\omega_2)$ 时,相应的折射率变化 $\Delta n(\omega_2) \approx \Delta n(\omega_1)$,亦即两光束的自聚焦程度近似相同。上述耦合自聚焦作用的结果,是使两入射光束在公共作用区的光束截面变小而光强(光功率密度)增大,从而导致每一个光束喇曼增益作用的增大和表观SRS阈值的同时降低。用喇曼共振引起的耦合自聚焦的观点,基本上可以解释本文所介绍的双波SRS的所有主要的特点和实验规律性。

参 考 文 献

- [1] 刘颂豪等;《物理学报》,1982年,31, No. 3, 328.
- [2] 赫光生;双光束共振耦合引起的折射率增强变化,(待发表)。