# 高压氢受激喇曼散射中一阶斯托克斯 散射的参量四波混频过程

李 港 郭奕理 丁海曙 金芬年 (清华大学无线电电子学系)

提要:本文讨论了在高压 H2 受激喇曼散射中产生一阶斯托克斯散射的参量四波混频过程。指出在一定的条件下,可以产生一阶斯托克斯散射的参量四波混频,并可以在能量转换过程中起重要作用。由实验得到了一阶斯托克斯参量四波混频过程与泵浦强度及 H2 压力的依赖关系。

# Parametric four-wave mixing process in first order Stokes scattering of SRS in H<sub>2</sub>

Li Gang, Guo Yili, Ding Haishu, Jin Fennian

(Department of Radio Electronics, Qinghua University)

Abstract: The investigation of the four-wave mixing process in first Stokes scattering of SRS in H<sub>2</sub> is presented in this paper. In certain conditions, the parametric four wave mixing process in first order Stokes can occur and it plays an important role in energy transfer. The dependence of the physical process in first order Stokes on pumping intensity and hydrogen pressure is studied experimentally.

## 一、引言

近年来,受激喇曼散射获得了广泛应用,同时促进了对散射机理的研究。例如一阶 Stokes 散射的产生过程,以往普遍认为是非 参量的受激散射过程,但 1979 年 V. Wilke 和 W. Schmidt 发表了他们的实验结果<sup>[1]</sup>,首次证实了 H<sub>2</sub> 中一阶 Stokes 散射存在着另外一种物理过程,即参量四波混频过程。

我们在实验中也观察到了一阶斯托克斯(以下简称  $S_1$ )散射的参量四波混频过程,并且得到了  $S_1$ 散射输出能量随气压的变化曲线,这条曲线与 V. Wilke 等人的实验 结果是类似的。为了进一步研究  $S_1$  的参量四波混频过程,我们进行了  $S_1$  散射角 计算值与测量值之间的对比,测量了  $S_1$  输出能量与泵浦能量之间的关系,并进行了初步分析。

收稿日期: 1983年6月30日。

# 二、空间特性

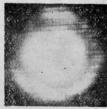
实验装置见图 1。泵浦源为 Nd:YAG 倍频激光器,输出波长 0.53 微米、脉宽 8 毫微秒的激光脉冲。喇曼室内充有高压氢气。

一阶 Stokes 散射一般表现为非参量的受激过程,即一般以轴向受激散射的方式出现,但我们拍摄了 S<sub>1</sub> 散射的空间分布,观察到除了轴向散射外,还具有环状散射(见图 2)。由于 Raman 室出口和其它光学元件的通光孔径均比 S<sub>1</sub> 光束直径大得多,环状散射不可能是衍射造成的。并且图 2 的照片是经过光栅分光后拍摄的,环状散射也不可能是其它波长的散射光。 我们认为这说明了 S<sub>1</sub> 参量四波混频过程的存在,即环状散射是由参量四波混频过程产生的。

可能发生参量四波混频过程的四个波是: 泵浦波、一阶 Stokes 波、二阶 Stokes 波、一阶 anti-Stokes 波。它们的位相匹配条件



图1 实验光路图







10 大气压



12 大气压 图 2 S<sub>1</sub> 散射的空间分布

为:  $K_{s1} = K_{as1} + K_{s2} - K_l$ , 式中  $K_l$ ,  $K_{s1}$ ,  $K_{s2}$ ,  $K_{as1}$ 分别代表它们的波矢, 其数值见表1(由于实验是在  $16^{\circ}$ C 条件下做的,为了便于比较,这里给出了 $16^{\circ}$ C 时波矢的计算值)。根据表 1中的波矢数值和我们的实验条件,这四个波仅能在图 3 的情况下满足位相匹配条件。在图 3 中要求有轴向一阶 anti—Stokes 波,我们在实验中观察到轴向一阶 anti—Stokes 散射,在有关的文献  $12^{\circ}$  3 中 也证实轴向一阶 anti—Stokes 散射的存在。因此可以认为,图 3 中所给出的位相匹配条件是有可能实现的。在图 3 的情况下, $S_1$  散射角的计算值见表 1 。可以看出,1 取射角随着气压的增加而变大。

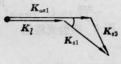


图 3 位相匹配图

表 1 16℃时,波矢和散射角的计算值

大 气 压		8 大气压	10 大气压	12 大气压	
波	$K_{s2}$	6.5957523	6.5974627	6.5991731	
	$K_{s1}$	9.2090214	9.2114286	9.2138358	
矢	$K_{l}$	11.822976	11.826096	11.829215	
	$K_{as1}$	14.436351	14.440215	14.444078	
S <sub>1</sub> 散射角(毫弧度)		7.6	9.1	10.5	

我们在距 Raman 室出口不同的距离上, 拍摄了  $S_1$  散射圆环,根据圆环直径,得出了  $S_1$  的散射角(见表 2)。比较  $S_1$  散射角的理 论计算值与测量值,可见它们在数量级上符 合得很好。

在其它条件不变的情况下, 我们又拍摄

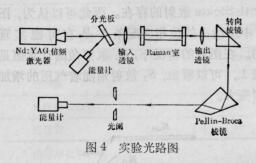
表 **2 16**°C 时, *S*<sub>1</sub> 散射角的测量值 (气压: 8 大气压)

距 Raman 室出口 距离	720 (毫米)	820 (毫米)	960 (毫米)	平均散射角
S <sub>1</sub> 散射环直径 (毫米)	22.5	24.2	26.9	9.1 (毫弧度)

了  $S_1$  散射圆环随气压变化情况(见图 2)。可以看出,在  $S_1$  散射角随气压的增加而变大这个结论上,理论分析与实验结果是一致的。

#### 三、泵 浦 特 性

实验装置见图 4。 保持其它条件 不变,改变泵浦强度时, $S_1$  散射输出能量的变化见图 5。



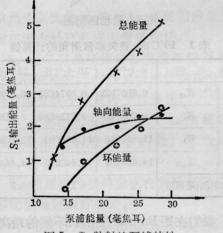


图 5 81 散射的泵浦特性

从图 5 可以看出, 当泵浦光强较低, 刚超过阈值时, 产生  $S_1$  轴向散射, 但这时转移到其它各阶散射波的能量很少, 各散射波由于光强弱而不能有效地参予四波混频作用。此时, 没有出现环状散射,  $S_1$  的非参量受激散射过程占优势。当泵浦增强时,  $S_1$  的非参量受激散射过程增强, 但其轴向散射达到一定强度后, 由于能量不断地转移到其它各阶散射波上, 故轴向散射能量随泵浦的增强而增加很少, 基本处于饱和状态。同时由于其它

各散射波能量不断增长,从而能有效地参予 四波混频作用,并出现 S<sub>1</sub> 的环状散射,且随 泵浦的增强而迅速增加。当泵浦达到一定强 度时,S<sub>1</sub> 环状散射能量超过了轴向散射能量。

由此看出,泵浦强度是影响  $S_1$  散射物理过程的重要因素。由于  $S_1$  轴向散射只决定于入射光强,而环状散射则与 anti-Stokes散射和高阶 Stokes 散射的强度有关,这就决定了  $S_1$  非参量受激散射过程不需要 很强的泵浦,只要超过阈值就行。而  $S_1$  的参量四波混频过程则需要泵浦光强达到较高的强度。我们在实验上观察到,在一定的气压条件下,只要泵浦较强,  $S_1$  的环状散射就出现,并且重复性很好。

#### 四、压力特性

当泵浦强度不变时,改变 日2 压力,  $S_1$  输出能量的变化见图 6。可以看出,在低气压端,  $S_1$  输出能量以环状散射为主。在高气压端,  $S_1$  输出能量以轴向散射为主。在中段,  $S_1$  的环状散射与轴向散射同时存在,并且对应着  $S_1$  较大能量输出。这说明了气压也是影响  $S_1$  散射物理过程的重要因素。

当气压大于10大气压时, S<sub>1</sub> 环状散射能量随着气压的增高而减少,这可作如下的解释:参予S<sub>1</sub> 四波混频作用的轴向一阶

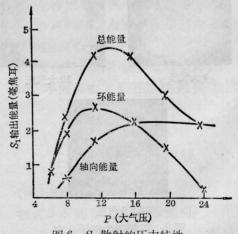


图 6 S<sub>1</sub> 散射的压力特性

anti-Stokes(aS<sub>1</sub>)散射波, 是由处于 H<sub>2</sub> 第一 振动激发态的分子与入射光子相互作用产生 的, 因此它的光强受 日。激发态分子数的影 响。激发态分子数多,轴向 aS<sub>1</sub> 散射强,反 之,则轴向  $aS_1$  散射弱。当气压增高时,分子 间碰撞加剧,激发态分子寿命减少。 所以在 相同的泵浦条件下,气压高时日。激发态分 子数小于气压低时 丑。激发态分子数,即轴 向 aS<sub>1</sub> 散射光强随着气压的增高而减弱。这 就引起了 8, 环状散射光强随着气压增高而 减弱。当气压增高到一定程度,轴向 $\alpha S_1$ 散 射光强很弱,不能参予四波混频作用, $S_1$ 的 环状散射消失。上述的解释可以由下面的实 验证实. 当提高泵浦强度时, 激发态分子数增 加。如果泵浦增强引起的激发态分子数的增 加量,大于气压增高引起的激发态分子数的 减少量,则当泵浦增强时,有可能在原来观察 不到  $S_1$  环状散射的较高气压下, 观察 到  $S_4$ 的环状散射。同样,如果降低泵浦而引起的 激发态分子数的减少量,大于气压降低引起 的激发态分子数的增加量,则泵浦降低时,可 能在原来能观察到 S1 环状散射的较低 气压 下,反而观察不到 $S_1$ 的环状散射。我们在实 验上, 使气压在10~24大气压范围内变化, 并相应改变泵浦强度,观察到了上述现象。

在低气压端, $S_1$  环状散射光强明显大于轴向散射光强,这可能是由于 $S_1$  轴向散射作为产生高阶 Raman 散射的一个"源",已经基本倒空所至。

#### 五、结 束 语

以上的讨论表明,一阶 Stokes 散射实际上存在着两种物理过程,即非参量受激散射过程和参量四波混频过程,这是本质上不同的两种物理过程。氢气压力和泵浦强度是影响这两种物理过程的两个重要因素。当气压或泵浦强度改变时,产生  $S_1$  散射的物理过程也发生变化,  $S_1$  的输出能量随之改变。在一定的气压和泵浦强度范围内,两种物理过程能够同时存在,各自产生相应的  $S_1$  散射,此时对应着较大的  $S_1$  能量输出。

本工作得到了姚敏言、娄彩云同志的热 情帮助和支持,在此表示衷心的感谢。

#### 参考文献

- [1] V. Wilke, W. Schmidt; Appl. Phys., 1979, 18, 177~181.
- [2] F. R. Anssenegg et al.; Opt. Commun., 1981, 37, No. 1, 59~66.
- [3] R. B. Andreev et al.; Opt. and Spectrosc., 1981,51, No. 4, 358~361.

## (上接第 322 页)

冲并不是很精确同步的<sup>[8]</sup>。但是它们之间的时间差很小,大约只有自身脉宽的十分之一。如果需要进一步改善同步的准确性,可以通过调整染料的浓度或是调整泵浦光的相对能量来实现。改变两条泵浦光的相对能量,只要简单地改变两个柱面镜所截取的 N<sub>2</sub> 激光的相对面积就可以了。

## 参考文献

[1] B. R. Marx et al.; Opt. Commun., 1976, 18, 437.

- [2] R. Wallenstein; Laser Handbook 3, Ed. by M.
  L. Stitch (North-Holland, Amsterdam, 1979),
  p. 330.
- [3] Y. Prior; Rev. Sci. Instrum., 1979, 50, 259.
- [4] S. G. Dinev et al.; Opt. Commun., 1980, 32, 313.
- [5] M. N. Nenchev, Y. H. Meyer; Appl. Phys., 1981, 24, 7.
- [6] S. W. Williams, et al.; Opt, Commun., 1983, 45, 112.
- [7] 韩全生等; 《物理》, 1983, 12, 231.
- [8] 张治国等; 《物理学报》, 1983, 32, 1143.