

# 低温下 H<sub>2</sub> 中的反斯托克斯受激喇曼散射\*

解笑湘

J. Schmeer J. Biesner K. H. Welge

(中国科学院安徽光机所)

(西德 Bielefeld 大学物理系)

**提要:** 本文描述了低温下 H<sub>2</sub> 中 266 nm 和 283 nm 激光的受激喇曼散射过程 (ASSRS)。在液氮温度下, 2~6 级反斯托克斯 (AS) 散射均比常温时的结果高。这一低温效应对高级 AS 散射尤其有效。

## Anti-Stokes stimulated Raman scattering in H<sub>2</sub> at low temperatures

Xie Xiaoxiang

(Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics, Academia Sinica, Hefei)

J. Schmeer, J. Biesner, K. H. Welge

(Department of Physics, University of Bielefeld, West Germany)

**Abstract:** The anti-Stokes stimulated Raman scattering (ASSRS) processes at 266 nm and 283 nm in compressed hydrogen at low temperatures are observed. By lowering the gas temperature to 78K, the intensities of 2nd to 6th order anti-Stokes (AS) scattering are increased comparing with the results at room temperatures.

人们对 H<sub>2</sub> 中的 SRS 过程已进行了大量的研究<sup>[1]</sup>。大量实验证明, H<sub>2</sub> 中的高级反斯托克斯 (AS) 的受激喇曼散射 (SRS) 是一种产生 UV 和 VUV 激光的有效途径。但是提高受激喇曼辐射的强度仍然是一个需要研究的课题。

Brink 等人<sup>[2]</sup>曾研究了 440 nm 激光在液氮温度下的 SRS 过程, 发现低温下 AS 散射输出增加了 70%。本文在液氮温度下研究了 266 nm 和 283 nm 激光在 H<sub>2</sub> 气中的 SRS 过程。

### 一、实验装置

实验装置如图 1 所示。YAG 激光泵浦的染料激光器 (Quanta-Ray) 作为入射光源, 其脉宽为 5 ns。YAG 激光的四次谐波为 266 nm 偏振激光, 其强度为 20 mJ/脉冲; 或者 YAG 激光的二次谐波 (530 nm) 泵浦的染料激光 (R6G) 产生 566 nm 激光, 再经倍频产

收稿日期: 1986 年 11 月 25 日。

\* 本工作是在西德 Bielefeld 大学完成的。

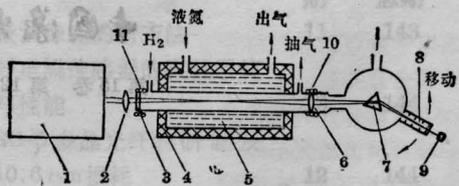


图1 冷却的喇曼位移池示意图

- 1—YAG 泵浦的染料激光器；2—石英透镜  $f_1$ ；  
3—石英窗口；4—泡沫塑料保温层；5—液氮；  
6— $\text{CaF}_2$  透镜  $f_2$ ；7— $\text{LiF}$  棱镜；8—消光臂；  
9—Pyro 检测器；10、11—电热丝

生强度为  $10 \sim 13 \text{ mJ/脉冲}$  的  $283 \text{ nm}$  UV 激光，其带宽约  $1 \text{ cm}^{-1}$ 。脉冲激光的重复频率为  $10 \text{ Hz}$ 。

不锈钢的喇曼池长  $75 \text{ cm}$ ，内径  $3.5 \text{ cm}$ 。激光输入端为一石英窗口，窗口前有一个可以移动的石英透镜，其焦距  $f_1 = 40 \text{ cm}$ ，可将入射激光聚焦在喇曼池中部。另一端有一  $f_2 = 11.5 \text{ cm}$  的  $\text{CaF}_2$  透镜。整个喇曼池由带有油扩散泵的真系统抽真空。

为了冷却喇曼池，在其中部焊接一个直径为  $13 \text{ cm}$  且带有两个出口的圆形空腔（如图1所示）。圆空腔外面用一层泡沫塑料保温，以防止液氮消耗过快。在池的两端绕上电热丝，加热至  $100 \sim 150^\circ\text{C}$ ，在此温度下，窗口可一直保持清洁透明不结霜。

一个自制的简单棱镜单色仪用波纹管与装有  $\text{CaF}_2$  透镜一端相连，并抽真空。内装有一个  $\text{LiF}$  棱镜，用以分离各级 AS 散射激光。通过可移动的消光臂，由 Pyro 检测器测量其能量。消光臂的输出窗口材料为  $\text{LiF}$ 。测量的能量误差约为  $20\%$ ，对于较高级的 AS 散射，测量误差约为  $30\%$ 。当测量短波长的 AS 散射时（如 5 级和 6 级 AS 散射），为了防止空气中的  $\text{O}_2$  对 AS 散射的吸收，使用流动的  $\text{N}_2$  气吹进从消光臂窗口至检测器的光路。

纯度为  $99.99\%$  的  $\text{H}_2$  气经干燥器后直接充入喇曼池，其压力由电容式压力计监测。当气体充入冷却池后，需停留几分钟才能进行实验，以使气体均匀冷却。

## 二、266 nm 激光的 AS 喇曼散射

由于第 1 级 AS 散射较强 ( $>160 \mu\text{J/脉冲}$ )，使 Pyro 检测器饱和，并且它的冷却效应不太明显，故我们从 2 级 AS 散射开始进行实验。实验中使用  $75 \text{ cm}$  长的喇曼池以及  $f_1 = 40 \text{ cm}$  的透镜。为了便于比较，以观察 AS 散射的冷却效应，首先在常温下测量 AS 散射强度随  $\text{H}_2$  气压的变化，其结果示于图 2。在常温下，5 级和 6 级 AS 散射十分弱，没有观察到它们的信号。3 级和 4 级 AS 散射强度明显低于 2 级 AS 散射。从图 2 还可看出，AS 散射的最佳气压值随 AS 的级数增加没有变化。最佳值的实验结果总结于表 1。

图 3 表示了液氮温度下，266 nm 激光的 AS 散射与  $\text{H}_2$  气压的关系。在此温度下，各级 AS 散射输出均有不同程度的提高，其结果也总结于表 1。有趣的是，在液氮温度下，观察到了 5 级和 6 级 AS 散射，分别具有  $2 \times 10^{13}$  和  $6 \times 10^{12}$  光子/脉冲的强度（见表 1）。低温下最佳气压值显著下降，小于常温值的一半。3、4、5 级 AS 散射的最佳气压值比 2 级 AS 略有减小，6 级 AS 却略有增加，但是在误差范围内，最佳气压值可认为没变化。

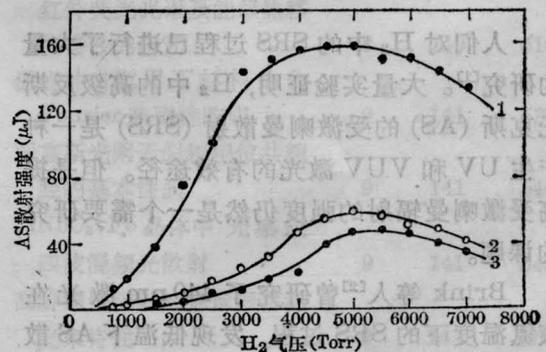


图2 常温下 266nm 激光的 AS 散射与  $\text{H}_2$  气压的关系

1—2AS；2—3AS；3—4AS

表 1 常温下和液氮温度下 266 nm 激光的 AS 散射强度

AS	波长 (nm)	常 温			液 氮 温 度			$P_1/P_0$
		最佳气压 (atm)	最佳能量 $P_0$ ( $\mu\text{J}/\text{脉冲}$ )	光子/脉冲 ( $\times 10^{13}$ )	最佳气压 (atm)	最佳能量 $P_1$ ( $\mu\text{J}/\text{脉冲}$ )	光子/脉冲 ( $\times 10^{13}$ )	
2 AS	217.9	6.6	157.5	17.3	2.4	212.5	23.3	1.4
3 AS	199.8	6.6	60.0	6.0	2.1	131.3	13.2	2.2
4 AS	184.5	6.6	47.5	4.4	2.1	61.3	5.7	1.3
5 AS	171.4	—	—	—	2.1	23.8	2.1	—
6 AS	160.0	—	—	—	2.4	6.9	0.6	—

表 2 常温下和液氮温度下 283 nm 激光的 AS 散射强度\*

AS	波长 (nm)	常 温			液 氮 温 度			$P_1/P_0$
		最佳气压 (atm)	最佳能量 $P_0$ ( $\mu\text{J}/\text{脉冲}$ )	光子/脉冲 ( $\times 10^{13}$ )	最佳气压 (atm)	最佳能量 $P_1$ ( $\mu\text{J}/\text{脉冲}$ )	光子/脉冲 ( $\times 10^{13}$ )	
2 AS	229.1	5.3	63.6	7.3	2.9	100.5	11.6	1.6
3 AS	209.2	5.3	39.9	4.2	2.6	52.5	5.5	1.3
4 AS	192.5	5.0	8.6	0.8	2.5	22.5	2.2	2.6
5 AS	178.2	5.0	1.3	0.1	1.8	11.3	1.0	8.7
6 AS	165.9	—	—	—	1.6	3.8	0.3	—

\* 以上均为 YAG 横向泵浦染料激光器的结果。

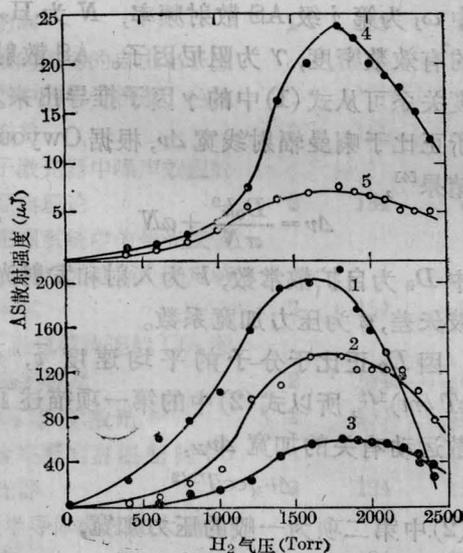


图 3 液氮温度下, 266 nm 激光的 AS 散射与  $\text{H}_2$  气压的关系

1—2AS; 2—3AS; 3—4AS; 4—5AS; 5—6AS

### 三、倍频染料激光的 AS 喇曼散射

倍频的染料激光(283 nm)和 566 nm 激光同时被聚焦在喇曼池中。在常温和 YAG 激光横向泵浦染料激光的条件下, 283 nm 激光的 2 级到 5 级 AS 散射强度与  $\text{H}_2$  气压的关系示于图 4。实验中发现, 在纵向泵浦染料激光的条件下, 其 AS 散射强度要比横向泵浦时小, 如 2 级 AS 散射强度约小 50%。最佳气压值随 AS 级数的增加变化不大。实验结果总结于表 2。实验中没有观察到 6 级 AS 散射。

图 5 表示了液氮温度下, 283 nm 激光的 2 级到 6 级 AS 散射强度与  $\text{H}_2$  气压的关系。其中 2、3、4 级 AS 既有 YAG 激光横向泵浦染料激光条件下的结果, 也有纵向泵浦的结

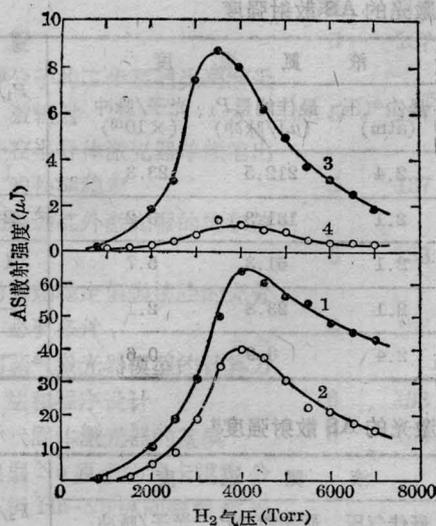


图4 常温下 283nm 激光的 AS 散射强度与 H<sub>2</sub> 气压的关系

(在 YAG 激光横向泵浦染料激光条件下)  
1—2AS; 2—3AS; 3—4AS; 4—5AS

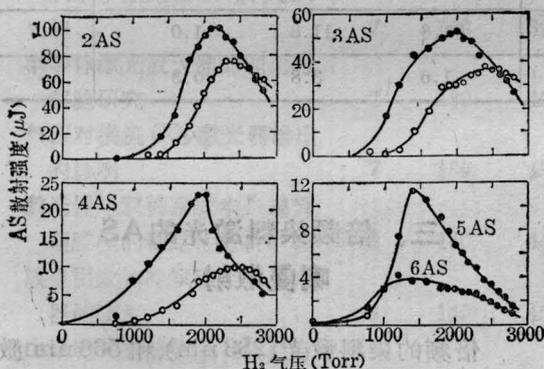


图5 液氮温度下 283nm 激光的 AS 散射与 H<sub>2</sub> 气压的关系

其中, 所有“●”表示 YAG 激光横向泵浦染料激光所得到的结果; 所有“○”表示纵向泵浦染料激光的结果。

果。但是在纵向泵浦条件下, 没有观察到 5 级和 6 级 AS 散射。一般纵向泵浦条件下的 AS 散射输出均比横向泵浦时小。

低温下的最佳值也列入表 2。从图 5 和表 2 均可看出, 最佳气压值随 AS 散射级数增加而减小。各级 AS 散射的最佳能量值均有提高, 如 5 AS 散射强度增加了约 7.7 倍。实验中发现, 入射激光的强度对 AS 散射的输出是有很影响的, 图 6 表示了 3 级 AS

散射强度与随波长而变的基频激光强度的关系。当基频激光能量比较低时, 其 3 级 AS 散射强度线性增加, 当基频激光达到一定能量值时, 如 10~12 mJ/脉冲, 3 级 AS 散射输出有大幅度地提高。

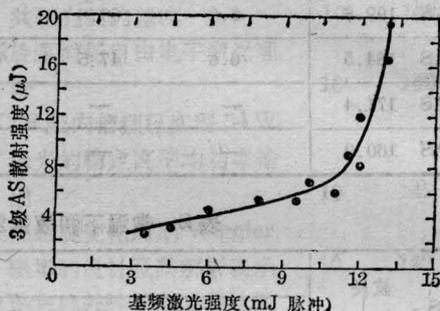


图6 当基频激光从 277~288 nm 扫描时, 其 3 级 AS 散射强度与基频激光强度的关系

#### 四、讨 论

在 H<sub>2</sub> 气中的 SRS 过程中, 喇曼增益系数  $g_R$  有如下关系<sup>[3]</sup>:

$$g_R \propto \frac{\omega_j N}{\gamma} \quad (1)$$

其中  $\omega_j$  为第  $j$  级 AS 散射频率,  $N$  为 H<sub>2</sub> 分子的有效数密度,  $\gamma$  为阻尼因子。AS 散射的温度关系可从式 (1) 中的  $\gamma$  因子推导出来。 $\gamma$  因子正比于喇曼辐射线宽  $\Delta\nu$ , 根据 Owyong 的结果<sup>[4]</sup>,

$$\Delta\nu = \frac{D_0 k^2}{\pi N} + aN \quad (2)$$

其中  $D_0$  为自扩散常数,  $k$  为入射和发射光子的波矢差,  $a$  为压力加宽系数。

因  $D_0$  正比于分子的平均速度  $\bar{v}$ ,  $\bar{v} = (2kT/m)^{1/2}$ , 所以式 (2) 中的第一项描述了与扩散运动有关的加宽  $\Delta\nu_M$ ,

$$\Delta\nu_M \propto T^{1/2} \quad (3)$$

式 (2) 中第二项为一般的压力加宽,

$$\Delta\nu_p = N\sigma\bar{v}/\pi \propto T^{1/2} \quad (4)$$

其中  $\sigma$  为分子碰撞截面。因此,

$$g_R \propto T^{-1/2} \quad (5)$$

由式 (5) 可定性地知道, 当温度降低时, 能增

加 AS 散射的输出。

从式(1)可知,增益系数  $g_R$  正比于  $N$ 。对于 AS 散射,  $N$  即为  $H_2$  分子中  $J=1$  转动能级上的数密度。常温下,约 67% 的  $H_2$  分子布居在  $J=1$  的转动能级上<sup>[2]</sup>,当  $H_2$  分子冷却到 78K 时,  $J=1$  能级的布居增加约 8%。因此有效数密度  $N$  的增加有利于增加 AS 散射输出。我们的实验结果也充分地证明了这一点。本实验除了观察到 5 级 AS(283nm) 输出有约 7 倍多的提高外,还观察到了常温下没有观察到的 AS 散射。

按照(5)式的温度关系,从室温到液氮温度,增益因子最多只会 2 倍的增加,而实际的测量值则远大于此预计值。其原因是增益因子  $g_R$  不但与温度有关,而且正比于  $H_2$  的数密度  $N$  和 AS 散射效率  $\omega_j$  ((1)式)。前面已说明了,温度降低,有效数密度  $N$  提高,有利于增加 AS 散射输出。而高级 AS 散射的频率越高,散射输出也越大。因此,实验上也只能在高级 AS 散射上观察到高增益现象。增益系数的温度关系有待进一步研究。

由于冷却效应,相同气压的气体在低温下有较高的密度。在液氮温度下,较低的气压即可获得与常温下较高气压时相同的能量输出。因此冷却效应使喇曼池的工作气压下降,可减少由于高压给实验带来的麻烦。

从表 1 中可见,在误差范围内,266nm 激光的 AS 散射的最佳气压值随 AS 的级数变化不大,但是对于 283nm 激光来说,可以明显发现最佳气压值随 AS 的级数增加而减小(见表 2 低温下结果)。这一现象是因为  $H_2$  的折射率  $n$  与  $H_2$  气压  $P$  有如下关系<sup>[5]</sup>,

$$\frac{dn(\lambda)}{d\lambda} \propto P \quad (7)$$

对于一个四波混频过程,失相配  $\Delta k \sim \Delta h$ , 随着气压的增加,  $\Delta h$  也增加,而且波长越短,这一影响越大。因此气压对高级 AS 的输出影响比较大,使其最佳气压值向低气压位移动。但是在 266nm 的实验中,没有发现同样现象。

可能是测量误差引起的,因为随着级数增加,AS 输出能量减小,测量误差也随之加大。

在进行 283nm 激光的实验中,我们对染料激光的两种泵浦方式,即横向和纵向泵浦方式,都进行了实验。结果表明,横向泵浦所产生的 AS 散射输出要比纵向泵浦平均大 20~30%。其原因与倍频染料激光光束剖面质量有关。纵向泵浦的染料激光光束剖面为环形,束中心的激光强度为 0;而横向泵浦的染料激光光束剖面为椭圆形,中心激光强度为最大。因光束剖面质量直接影响到聚焦程度,故横向泵浦染料激光的 AS 散射有高输出

使用横向泵浦的染料激光,我们测量了可调激光的第 3 级 AS 散射输出。如果考察入射激光的随波长变化的光强对扫描激光的第 3 级 AS 输出的影响,则可发现,入射激光有一阈值强度(如图 6 所示)。因此用可调激光进行 AS 散射实验时,在能量超过一定阈值的波长范围内可得到较大的 AS 输出。

在实验中发现,当用液氮冷却充有一定气压  $H_2$  气的喇曼池后,输出的光束方向向下偏离。如果将光束反射到较远的壁上,并得到一个较大的光斑时,发现光斑有轻微的抖动。这一现象的原因可能是因为喇曼池的不均匀冷却。因为中部为 78K,而两端却有 100~150°C 的温度,这样的温差一方面产生池的机械收缩变形,另一方面可能因温差而造成气体密度不同,使折射率  $n$  发生变化,可引起光束改变方向。由于温差,使池内  $H_2$  有轻微的循环移动,导致光斑的抖动。

## 参 考 文 献

- 1 D. J. Brink *et al.*, *Laser and Optoelectr.*, **3**, 41 (1982)
- 2 D. J. Brink and Proch, *Opt. Lett.*, **7**, 494 (1982); D. J. Brink, *et al.*, *J. Opt. Soc. Am.*, **73**, 23(1983)
- 3 D. C. Hanna *et al.*, *Nonlinear Optics of Free Atoms and Molecules* (Springer-Verlag, Berlin), 1979
- 4 A. Owyong, *Opt. Lett.*, **2**, 91 (1978)
- 5 V. Wilke *et al.*, *Appl. Phys.*, **16**, 151(1978)