

紫外激光泵浦的乙醇液滴中的受激喇曼振荡

王 军 董耕发 钱士雄 李郁芬

(复旦大学物理系)

Stimulated Raman oscillation from ethanol droplets pumped by ultraviolet laser pulses

Wang Jun, Dong Genfa, Qian Shixiong, Li Yufen

(Physics Department, Fudan University, Shanghai)

提要: 本文报道了在 Nd:YAG 激光器的三倍频光束 ($\lambda=355\text{nm}$) 泵浦下的乙醇液滴 ($a\approx 30\mu\text{m}$) 的受激喇曼振荡发射。

关键词: 紫外脉冲激光, 受激喇曼振荡

一、引言

近年来, 微粒与激光相互作用的各种非线性光学过程日益受到人们的重视。R. K. Chang, J. B. Snow 和钱士雄等已采用可见区的 532nm 激光束泵浦微米级的液滴, 研究了乙醇、水等液滴中的受激喇曼振荡 (SRO)、相干喇曼混合 (CRM) 以及染料滴中的激光振荡^[1~5]。

本文采用 Nd:YAG 激光器的三倍频紫外激光 ($\lambda=355\text{nm}$) 来泵浦液滴, 旨在研究紫外激光泵浦下液滴中的 SRO, 这样可以使产生的 Stokes SRO 移向短波段, 以便于光学多道分析仪接收更高阶的振荡。并对实验结果进行了分析。

二、球体腔中的 SRO 阈值的估计

乙醇液滴的 SRO 同乙醇液体池中的

SRS 有明显的不同。这是由于光在液滴与空气的界面上因液滴折射率和周围介质折射率不同而存在内反射, 因此可以在球滴内得到较高的光学反馈而形成振荡。从物理上看, 液滴是一种微型的球体光学谐振腔^[2]。

按照 Maxwell 电磁理论已经可以精确计算在平面波照射下, 球体腔内的内场分布和散射场分布^[6,7], 散射谱中增强峰的位置反映了球体腔的本征模的位置。腔模的位置可以由下面的条件决定:

TM 模

$$\frac{n_1^2 j_n(n_1 x)}{h_n^{(1)}(x)} = \frac{[n_1 x j_n(n_1 x)]'}{[x h_n^{(1)}(x)]'} \quad (1a)$$

TE 模

$$\frac{j_n(n_1 x)}{h_n^{(1)}(x)} = \frac{[n_1 x j_n(n_1 x)]'}{[x h_n^{(1)}(x)]'} \quad (1b)$$

其中 n_1 是球内介质相对于球外介质的相对折射率; $j_n(x)$ 和 $h_n^{(1)}(x)$ 分别是第 n 阶球 Bessel 函数和球 Hankel 函数; x 是尺寸参

收稿日期: 1987年10月7日。

数 $x = 2\pi a/\lambda$, 其中 a 是球滴的半径。腔模有时可简记为 $a_{n,l}$ 及 $b_{n,l}$, l 是序数。

图 1 是我们计算的乙醇液滴 ($n_1 = 1.36$) 的本征模的尺寸参数和内场系数 c, d 的一些结果。

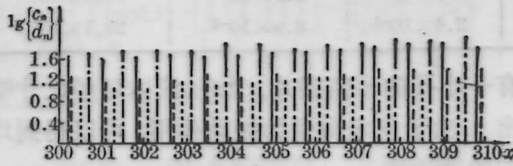


图 1 计算的乙醇液滴 ($n_1 = 1.36$) 的 TM 及 TE 本征模, 序数 $l = 16, 17$, 尺寸参数 $x = 300 \sim 310$ 的 x 值及相应的内场系数

其中——为 $a_n, 16$; ——为 $b_n, 16$;
——为 $a_n, 17$; ——为 $b_n, 17$

按照非线性光学理论, 通常的 SRS 处理方法是, 求解在准稳态和平面波泵浦情况下, 泵浦场和 Stokes 场的一组耦合波方程:^[8, 9]

$$\begin{aligned} \frac{dI_L}{dz} &= -g_0 I_{S1} I_L - \alpha_0 I_L \\ \frac{dI_{S1}}{dz} &= g_{S1} (I_{S1} I_L - I_{S1} I_{S2}) - \alpha_1 I_{S1} \quad (2) \\ \frac{dI_{S2}}{dz} &= g_{S2} (I_{S2} I_{S1} - I_{S2} I_{S3}) - \alpha_2 I_{S2} \\ &\dots \end{aligned}$$

其中 I_L 为泵浦场的强度, I_{S_i} 、 α_i 和 g_{S_i} 分别是第 i 阶 Stokes 场的强度、吸收系数和增益系数, 且

$$g_{S_i} = g_0 \frac{\omega_{S_i}}{\omega_L} \quad (i = 1, 2, \dots) \quad (3)$$

$$g_0 = -\frac{2\omega_L}{\varepsilon_0 n_L^2 c^2} I_m(\chi^{(3)}) \quad (4)$$

n_L 是介质的折射率。在介质中, Stokes 场是从量子噪声开始, 经过不断指数放大而建立的。

在 Raman 池中产生第一阶 Stokes 的 SRS 阈值通常取为

$$(g_{S1} I_L L)_{th} \approx 25$$

对于一个 Raman 振荡器, 若其总反射率为 R , 透过率为 $T = 1 - R$ 。则在腔内来回反射 M 次后的 Stokes 场光强为

$$I_S = I_{SN} (e^{g I_L L} - 1) \frac{(Re^{2g I_L L})^{M+1} - 1}{Re^{2g I_L L} - 1} \quad (5)$$

因而产生 SRO 的阈值条件可相应地写为

$$(e^{g I_L L} - 1) \frac{(Re^{2g I_L L})^{M+1} - 1}{Re^{2g I_L L} - 1} \approx e^{25} \quad (6)$$

由阈值条件 (6) 可见, M 值对阈值的影响很大, 对脉宽为 t_p 的激光来说, M 值近似为

$$M \approx \frac{c t_p}{2 n_L L} - \frac{1}{2} \quad (7)$$

根据 (6) 式我们可以估算在几种不同情况下的 SRS 和 SRO 的阈值。计算中取乙醇为介质, 有 $n_L = 1.36$, $g = 5.1 \times 10^{-3} \text{ cm/MW}$ 及 $t_p = 10 \text{ ns}$ 。

表 1 几种不同情况 SRS 和 SRO 阈值的比较

	行 波	长振荡腔	短振荡腔
L	25 cm	25 cm	100 μm
R		0.9	0.99
T		0.1	0.01
M	1	4	1.1×10^4
$(g I_L L)_{th}$	25	2.82	6.19×10^{-3}
$(I_L)_{th}$	196 MW/cm ²	22.1 MW/cm ²	121 MW/cm ²

由表 1 可见, 行波的 SRS 阈值要比长振荡腔的 SRO 阈值高得多, 而短振荡腔的阈值虽比行波情况要低, 但仍高于长振荡腔的阈值, 这是由于腔长太短, 引起损耗增大所致。如果使透过率进一步降低, 则阈值会有所下降。

对液滴来讲, 其半径 $a \approx 30 \mu\text{m}$, 来回振荡一周的路径近似为圆的周长 $2L = 2\pi a$, 则 $L \approx 94 \mu\text{m}$, 是超短腔。

应用谐振腔理论, 我们可以得出线宽 Γ 和等效透过率 T_{eff} 的关系, 其中 Γ 是空腔振动模的半极大全宽 ($\Gamma = \frac{a}{c} \Delta\omega$)

$$T_{eff} = 1 - e^{-2\pi m \Gamma} \quad (8)$$

对于在 $x = 287$ 附近的一些具有不同 l 的本征模的 Γ 、 T_{eff} 及 $(I_L)_{th}$ 等列于表 2, 计算中

表2 球腔尺寸参数 $x=287$ 附近, $\alpha_{n,l}$ 模的 x, d, Γ, T_{eff} 和 $(L)_{th}$ 随序数 l 的变化关系

l	n	x	d	Γ	T_{eff}	$(L)_{th}(\text{MW}/\text{cm}^2)$
14	308	287.40	3.5×10^3	2.5×10^{-5}	2.1×10^{-1}	24.5
15	304	287.50	73	5.9×10^{-4}	5.0×10^{-3}	74.5
16	299	287.38	18	9.3×10^{-3}	8.0×10^{-2}	882
17	295	287.59	6.7	5.8×10^{-2}	3.9×10^{-1}	5.10×10^3
18	291	287.73	3.4	2.4×10^{-1}	8.9×10^{-1}	23.1×10^3

仍取乙醇为介质。

从表2可以看到, 球腔内不同的本征模具有不同的SRO阈值, 有小序数 l 和大模数 n 的模就有低的透射损耗和低的SRO阈值, 其阈值可以比25cm长的Raman池的阈值低得多, 甚至可以低于普通的长振荡腔的SRO阈值, 尽管液滴的尺寸比上述两种情形的尺寸小几个数量级。

三、实验装置

我们采用Nd:YAG激光器的三倍频输出($\lambda=355\text{nm}$)为泵浦光, 紫外泵浦光经柱面透镜 L_1 聚焦后照射到液滴上, 在液滴中振荡产生的Stokes SRO由透镜 L_2 和 L_3 聚到光栅单色仪的入射狭缝, 色散后的光谱由OSA 500型光学多道分析仪接收测量, 并可由Apple II微机存贮或直接从X-Y记录仪打印, 实验装置如图2所示。

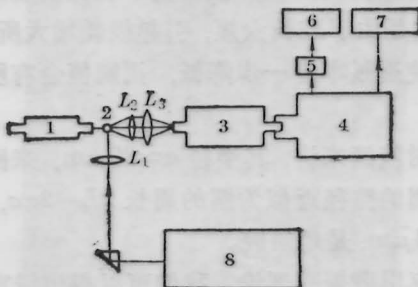


图2 实验装置图

1—显微镜; 2—液滴; 3—单色仪; 4—OSA500;
5—A/D; 6—Apple II微机; 7—X-Y记录仪;
8—激光器

液滴发生器如图3所示, 加压液体由管道引入到密闭室中, 在该室的底部放一中心

有一小孔的不锈钢片, 加压液体可经此片喷出。由于压电陶瓷的振动作用, 可以得到均匀的液滴流。

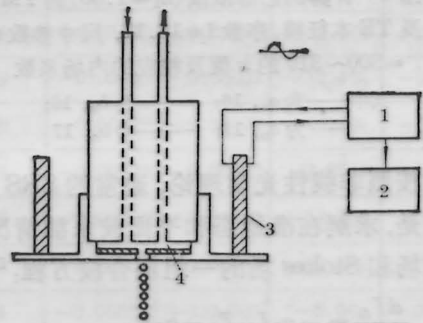


图3 液滴发生器装置图

1—正弦波发生器; 2—数学频率计; 3—压电陶瓷; 4—加压液体室

实验中经柱面透镜聚焦的泵浦光的光斑约为 $5\text{mm} \times 240\mu\text{m}$, 相应于 10mJ 的入射脉冲能量的聚焦功率密度约为 $80\text{MW}/\text{cm}^2$ 。在这样的泵浦功率密度时, 已可从乙醇液滴得到很强的SRO。通过显微镜观察, 则可以看到一串有明亮蓝绿边界的液滴流, 而采用这样的聚焦方式去泵浦一个10cm长的乙醇Raman池则不能观察到乙醇的一阶Stokes SRS, 更不能测到高阶的SRS。

四、实验结果及分析

图4给出了乙醇液滴 ($a \approx 30\mu\text{m}$) 中观察到的1~5阶Stokes SRO谱。从中可见, 第5阶Stokes SRO的强度仅衰减为第1阶的 $1/27$, 这种衰减缓慢的变化趋势主要是由于球体腔的作用而形成的。球体腔一方面由于它的高反馈而具有较低的SRO阈值; 另一

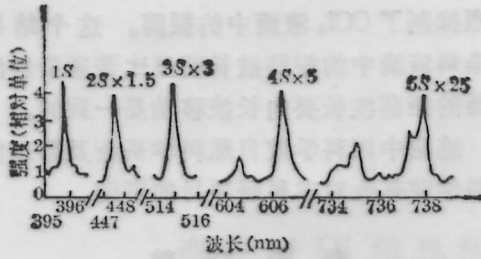


图4 紫外激光 ($\lambda=355\text{ nm}$, $t_p=10\text{ ns}$)
泵浦乙醇液滴
($\sigma \approx 30\ \mu\text{m}$) 的1~5阶 Stokes SRO 谱

方面,腔内的振荡模具有较强的内场强度,所以低阶 Stokes 振荡的强内场非常有利于泵浦产生高阶 Stokes SRO。

尽管如此,在 100 MW/cm^2 功率密度的紫外激光场作用下,乙醇液滴可以产生强的 Stokes SRO,还必须计及四波混频在产生初始 Stokes 信号中的作用。无论在用 532 nm 光泵浦的实验还是现在 355 nm 光泵浦的实验都表明在液滴中只要有 Stokes SRO 产生,则都是多阶同时出现。表明液滴中 n 阶 Stokes SRO 的产生不仅与 $(n-1)$ 阶 Stokes 场有关,而且还与 $(n-2)$ 阶 Stokes 场有关,使得 n 阶 Stokes 场不必从量子噪声开始建立,而可以直接从由 $(n-1)$ 阶与 $(n-2)$ 阶 Stokes 场的四波混频过程产生而建立振荡,这就大大降低了液滴中的 Stokes SRO 的阈值。

在乙醇液滴的高阶 Stokes SRO 谱中,还观察到每阶有时包含两个强峰。如在第5阶 SRO 谱中,分析表明波长较长的峰对应于乙醇的振动模 $\nu_1=2928\text{ cm}^{-1}$ 的5阶 Stokes 振荡,而另一个峰则是 ν_1 和另一个振动模 $\nu_2=2877\text{ cm}^{-1}$ 的组合 Stokes 振荡。其组合形成的能级图如图5所示。组合振荡可由两个泵浦光场产生,其组合频移 $\nu_c=4\nu_1+\nu_2$ 。

实验中发现组合振荡的产生与腔模的共振情况关系比较密切,如图6所示。在6(a)中可看到 $3\nu_1$ 和 $(2\nu_1+\nu_2)$ 两个峰,而在6(b)中则组合振荡峰消失。

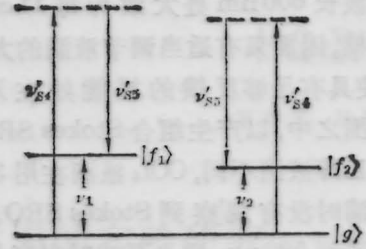


图5 组合 Stokes SRO 场形成的能级图

$$\nu_{S4} = \nu'_L - 4\nu_1; \quad \nu'_{S4} = \nu_L - (3\nu_1 + \nu_2)$$

$$\nu'_{S5} = \nu_L - (4\nu_1 + \nu_2)$$

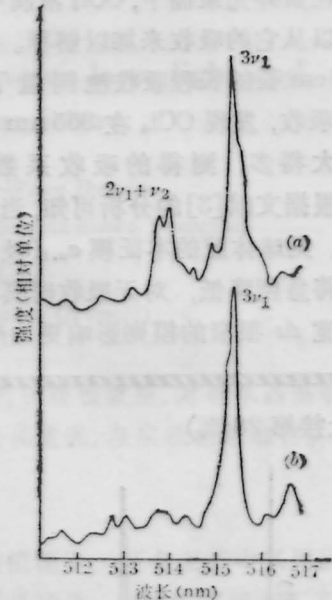


图6 紫外激光($\lambda=355\text{ nm}$)泵浦乙醇液滴
的第三阶 Stokes 光谱
(a)、(b)分别对应于不同大小的液滴

引起这种现象的原因是因为,在液滴中产生 SRO 需要有两个条件,即足够的泵浦光场和 Raman 散射截面以产生增益,以及足够的反馈以降低损耗。对于乙醇液滴中的组合激发 $(n\nu_1+\nu_2)$,则泵浦场可来自 $(n-1)\nu_1+\nu_2$ 及 $n\nu_1$ 场。其中 $n\nu_1$ 场是比较强的,它可能对 ν_2 模引起增益,但是对于 $(n\nu_1+\nu_2)$ 这个组合模的线宽范围之内,是否具有足够反馈的模,则是决定这个组合振荡能否产生的因素。从图1也可看出,本征模有一定的分布,若计及线宽 Δx 在 $10^{-4} \sim 10^{-1}$ 范围内的 TE 和 TM 两类本征模,那么模的分布

密度在波长 600 nm 处大致为每 11 cm^{-1} 中有一个模。因而只有适当调节液滴的大小(亦即 x) 使具有足够反馈的模能处在 Raman 线宽范围之中,以产生组合 Stokes SRO。

与乙醇液滴不同, CCl_4 液滴在用 355 nm 激光泵浦时没有观察到 Stokes SRO。 CCl_4 液滴在受到 532 nm 激光泵浦时很容易产生 Stokes SRO^[4], 我们已经测量到高达 17 阶的 Stokes SRO, 这说明 CCl_4 具有很大的 Raman 增益。在紫外光泵浦下, CCl_4 液滴中 SRO 的抑制可以从它的吸收来加以解释。我们采用一个 45 cm 长的长程吸收池测量了乙醇和 CCl_4 的吸收, 发现 CCl_4 在 355 nm 处的吸收比乙醇大得多, 测得的吸收系数 $\alpha \sim 0.02 \text{ cm}^{-1}$ 。根据文献[3]的分析可知, 当腔内存在吸收时, 则球体腔的本征模 $a_{n,l}$ (及 $b_{n,l}$) 的反馈系数将急剧降低, 对无吸收时具有高反馈亦即线宽 Δx 很窄的模则影响更为严重, 这就

强烈抑制了 CCl_4 液滴中的振荡。这个结果与染料液滴中的振荡波长明显比普通染料激光器的振荡波长要向长波移动是一致的。

感谢中国科学院自然科学基金及第三世界科学院基金对本科研项目的资助。

参 考 文 献

- 1 H. M. Tzeng *et al.*, *Opt. Lett.*, **9**, 499(1984)
- 2 J. B. Sonw *et al.*, *Opt. Lett.*, **10**, 37(1985)
- 3 S. X. Qian *et al.*, *Opt. Lett.*, **10**, 499(1985)
- 4 S. X. Qian *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **56**, 926(1986)
- 5 钱士雄, *光学学报*, **6**, 97(1986)
- 6 C. F. Bohren *et al.*, "Absorption and Scattering of Light by Small Particles"(John Wiley & Sons 1983)
- 7 P. R. Conwell *et al.*, *JOSA*, **A1**, 62(1984)
- 8 Y. R. Shen, "The Principles of Nonlinear Optics"(John Wiley & Sons, 1984)
- 9 A. Penzkofer *et al.*, *Prog. Quant. Electr.*, **6**, 55(1979)

(上接第 28 页)

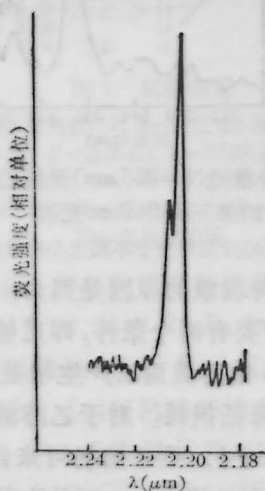


图 8 与 SHRS 级联的 $\text{Na}_4\text{P}-4\text{S}$ 荧光谱

表 3

跃 迁	理论值波长 (空气) (μm)	实验值波长 (μm)	相对强度
$4P_{3/2} \rightarrow 4S$	2.206	2.203	强
$4P_{1/2} \rightarrow 4S$	2.208	2.208	弱

参 考 文 献

- 1 E. K. Kraulinya *et al.*, *Chem. Phys. Lett.*, **37**(3), 565(1976)
- 2 D. Cotter *et al.*, *Opt. Commun.*, **22**(2), 190(1977)
- 3 D. Krokkel *et al.*, *IEEE J. Quant. Electr.*, **QE22**(3), 489(1986)