

乙醇溶液中瞬态受激喇曼散射动力学过程的实验研究

刘一先 钱列加 张筑虹 李富铭
(复旦大学物理系)

提要: 本文报道了用于研究乙醇溶液中瞬态受激喇曼散射动力学过程的实验装置和实验结果,并与 Carman 的理论计算模型进行了比较,结果基本符合。在最佳参量运转时获得了脉宽 ~ 310 fs 的喇曼散射光,其脉宽比泵浦光压缩了 ~ 80 倍。

关键词: 瞬态受激喇曼散射,乙醇

Experimental study on kinetic process of transient stimulated Raman scattering in ethanol

Liu Yixian, Qian Liejia, Zhang Zhuhong, Li Fuming
(Department of Physics, Fudan University, Shanghai)

Abstract: Experimental setup for studying the kinetic process of TSRS in ethanol and the experimental results are reported. Comparing the experimental results with the theoretical model of Carman et al., both were basically agreeable. Raman pulse of ~ 310 fs was obtained at the optimum operating parameters. The Raman pulse width was narrowed by ~ 80 times as that of the pumping pulse.

Key words: transient stimulated Raman scattering, ethanol

引 言

喇曼散射现象很早就为人们所发现,但瞬态受激喇曼散射过程则是 70 年代才开始为人们所观察到并很快成为科学家们广泛研究的理论和实验课题^[1~4]。瞬态受激喇曼散射过程的重要性是由于这一过程不仅可以有效地压缩脉宽和在不同波段实现波长可调谐的微微秒甚至亚微微秒光源^[1],而且也是非线性光谱学中研究强光与物质相互作用时获得物质分子有用信息的重要手段之一。本文着重研究了乙醇溶液中 O—H 伸张模的动力学过程与泵浦光参量的关系。采用锁模 Nd: YAG 激光器的二次谐波作泵浦源,脉宽为 24 ps,当泵浦光峰值功率从 $\sim 0.8 \times 10^9$ W/cm² 到 $\sim 2.7 \times 10^9$ W/cm² 变化时,前向斯托克斯脉冲的峰值位置相对于泵浦光脉冲的峰值位置的相对延迟从 ~ 15 ps 增加到 ~ 19 ps,斯托克斯脉冲的脉宽则从 ~ 4.8 ps 减少到 ~ 2.5 ps。在最佳运转条件下,获得的最窄的后向斯托克斯脉冲宽度为 ~ 310 fs。

实验装置

实验装置如图 1 所示, 激光器是主-被动锁模 Nd: YAG 401 系列, 其基波脉宽最窄为

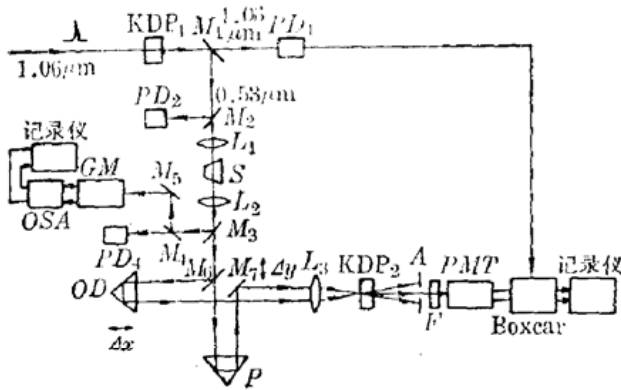


图 1 实验装置草图

35 ps, 经 KDP₁ 倍频并用双色镜 M₁ 分离基波光与谐波光; 透过的基波光由 PD₁ 光二极管接收用于同步触发 Boxcar 取样积分平均器; 反射的 0.53 μm 谐波光用 M₂ 镜分取部分光束由 PD₂ 接收用于监控泵浦光强的变化; 透过 M₂ 镜的光束经 L₁ (f₁ = 12 cm) 透镜聚焦到盛有乙醇的喇曼池 S 中, 喇曼池为倾斜放置其光学路程为 15 mm; 前向散射的喇曼光束经透镜 L₂ (f₂ = 12 cm) 准直并用 M₃ 镜分成二部分, 反射

部分再用 M₄ 镜分取一部分经 M₅ 镜进行光路转折后送到 GM 光栅单色仪中, 经色散后调焦到 OSA 光学多道分析仪的接受靶上对 TSRS 光的瞬态光谱特性进行观察和记录; 透过 M₄ 镜的 TSRS 光束由 PD₄ 接收用于测定其光强的变化; 透过 M₃ 镜的 TSRS 光再用 M₆ 镜等分成二部分, 此二部分光束分别经光学延迟线 OD 和 P 进行时间延迟并由透镜 L₃ (f₃ = 6 cm) 同时调焦到 KDP₂ 中, 晶体厚度为 ~1 mm, 由 KDP₂ 产生的谐波光经小孔 A 和滤光器 F 滤去背景光后用 PMT 紫外光电倍增管接收并送到 Boxcar 取样积分平均器中进行处理和由记录仪记录其相关函数信号, 由此系统对 TSRS 光的瞬态时间特性进行测量。

实验结果与讨论

1. TSRS 光的瞬时特性的测量

由上述装置和频率上转换装置(图中未画出), 改变光学延迟线 OD, 首先测定泵浦光束的脉宽和峰值位置, 然后测定喇曼光束的脉宽和峰值位置相对于泵浦光束峰值位置的相对延迟,

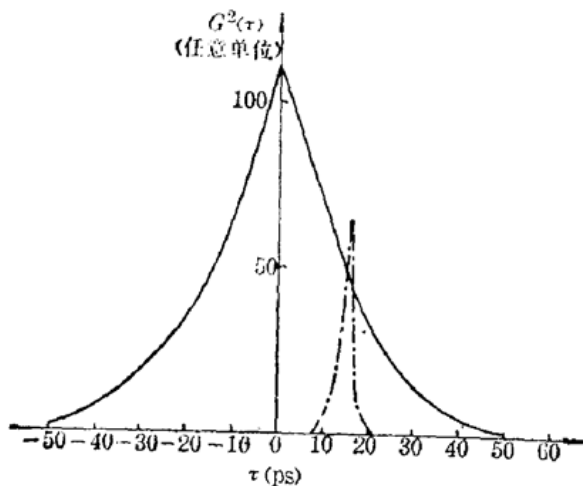


图 2 TSRS 脉冲和泵浦脉冲之间的相对延迟

$P_w \sim 1.1 \times 10^9 \text{ W/cm}^2$, 实线——泵浦脉冲, 点划线——TSRS 脉冲

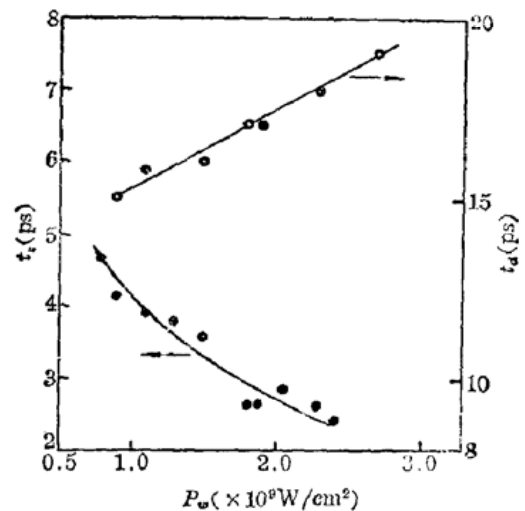


图 3 斯托克斯脉冲宽度 t_s 和其峰值位置相对泵浦光的延迟 t_d 随泵浦光功率变化的关系

当泵浦光功率 $\sim 1.1 \times 10^9 \text{ W/cm}^2$ 时, 测得的相关函数曲线如图 2 所示。由图 2 可知, 喇曼光脉宽的压缩效应和相对泵浦光的延迟是明显的, 我们的泵浦光脉宽 $\sim 24 \text{ ps}$, 而喇曼光脉宽 $\sim 3.5 \text{ ps}$, 其峰值位置相对泵浦光的峰值位置的延迟时间 $\sim 16 \text{ ps}$ 。原因是因为物质内振动波的建立具有惯性, 所以在泵浦光传播的路径上建立的振动波在时间上是落后于泵浦光的, 并且其振幅是在泵浦光的尾部达到最大值, 而喇曼光的产生是由泵浦光电场和振动波电场同时作用的结果, 由此喇曼光的脉宽比泵浦光脉宽窄得多, 同时其峰值位置也落后于泵浦光的峰值位置。喇曼光的形状是与泵浦光的尾部形状密切相关的。由于本装置测得的是二级相关函数信号, 所以不能反映其喇曼光的形状。

改变泵浦光的强度(脉宽不变), 也即改变其峰值功率, 测得的喇曼光脉宽和其峰值位置相对泵浦光峰值位置的延迟时间表示在图 3 中。从图中可以看出, 喇曼光脉宽是随泵浦光峰值功率的增加而变窄, 泵浦光功率从 $0.8 \times 10^9 \text{ W/cm}^2$ 增加到 $2.3 \times 10^9 \text{ W/cm}^2$ 时, 其相应的喇曼光的脉宽从 4.8 ps 减少到 $\sim 2.5 \text{ ps}$, 而相对延迟时间则随泵浦光功率从 $0.9 \times 10^9 \text{ W/cm}^2$ 增加到 $2.7 \times 10^9 \text{ W/cm}^2$ 时, 喇曼光的延迟从 15 ps 增加到 19 ps 。

根据 Carman 等人的理论分析, 假定泵浦光脉冲的形状为高斯线型, 即具有 $E_L(t') = E_{L,\max} e^{-(t'/t_p)^2}$, 则喇曼光脉冲的峰值位置为^[2],

$$t_{\max} = t_p \left(\frac{1}{2} \ln G_{ss} \right)^{1/2} \quad (1)$$

式中 t_p 为泵浦光脉宽; G_{ss} 为稳态时的喇曼增益, 且有

$$G_{ss} = 2K_1 K_2 |E_L(t')|_{\max}^2 Z / r \quad (2)$$

其中 K_1 和 K_2 为参量耦合常数; r^{-1} 是光学声子波的衰减或消相位时间。而瞬态喇曼增益 G_T 与 G_{ss} 具有下式近似关系。

$$G_{ss} = \frac{G_T^2}{8r} \int_{-\infty}^{t'} e^{-2(t''/t_p)^2} dt'' \quad (3)$$

因此可得到喇曼脉冲峰值位置与瞬态增益的关系为

$$t_d/t_p = \left[\frac{1}{2} \ln \left(G_T^2 / 8r \int_{-\infty}^{t'} e^{-2(t''/t_p)^2} dt'' \right) \right]^{1/2} \quad (4)$$

喇曼脉冲宽度可求得为

$$t_s/t_p = 1 / \left[\frac{1}{2} \ln \left(1/8r \int_{-\infty}^{t'} e^{-2(t''/t_p)^2} dt'' \right) \right]^{1/2} \quad (5)$$

将实验数据代入(4)和(5)式, 由计算机计算的结果表示在图 4 中。图 4 和图 3 比较可知, 在泵浦功率范围内实验结果与 Carman 的理论模型计算的曲线符合很好, 并且从图 4 中可以找到喇曼光的瞬态增益为 $9 \sim 14$ 之间。在实验中还观察到当泵浦光功率大于 $4 \times 10^9 \text{ W/cm}^2$ 时, 喇曼光脉宽明显变宽并且分裂成许多尖峰, 同时峰值相对延迟时间也缩短, 这时 Carman 的模型已不再适用。可能是由于泵浦光峰值功率增加后, 介质中出现瞬态自聚焦效应, 多峰效应则对应了不同焦点处的喇曼光的缘故。

前向喇曼光的强度随泵浦光功率变化的关系如图 5 所示。喇曼光强与泵浦光强之比, 其典型值 $\sim 10\%$ 。

我们对不同喇曼池长, 透镜焦距和泵浦光功率下的喇曼光的脉宽进行了测试, 当喇曼池长 $l = 5 \text{ mm}$, 透镜焦距 $f = 5 \text{ cm}$ 和在最佳泵浦功率条件下测得的后向喇曼光的二级相关函数曲

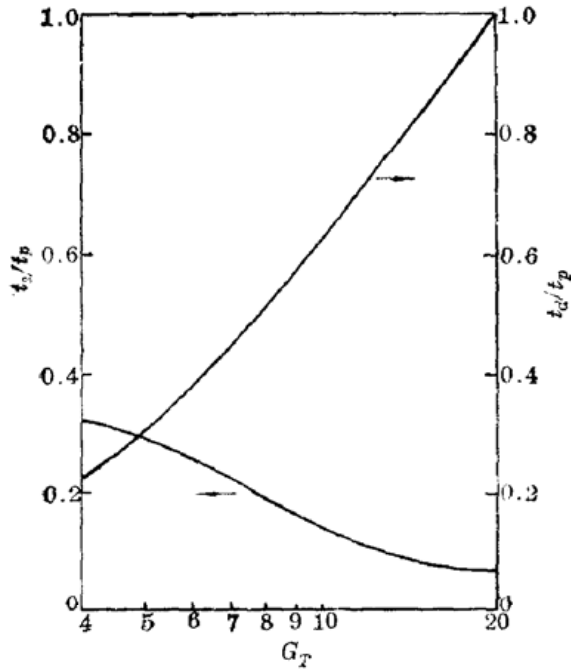


图4 斯托克斯脉宽 t_s 和相对延迟时间 t_d 与瞬态增益 G_T 关系 ($\tau t_p = 12$)

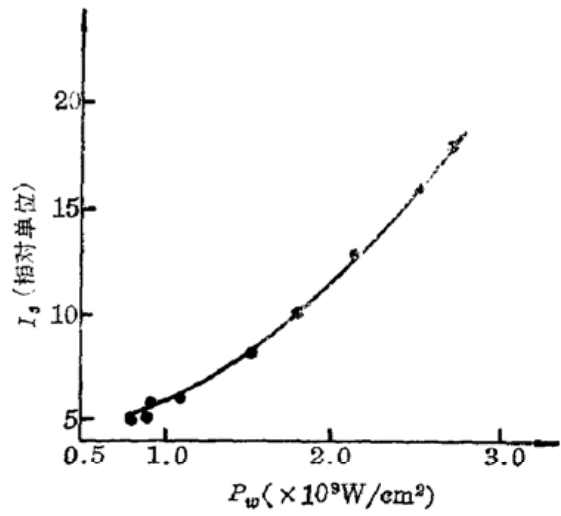


图5 前向斯托克斯脉冲强度随泵浦光功率变化的关系

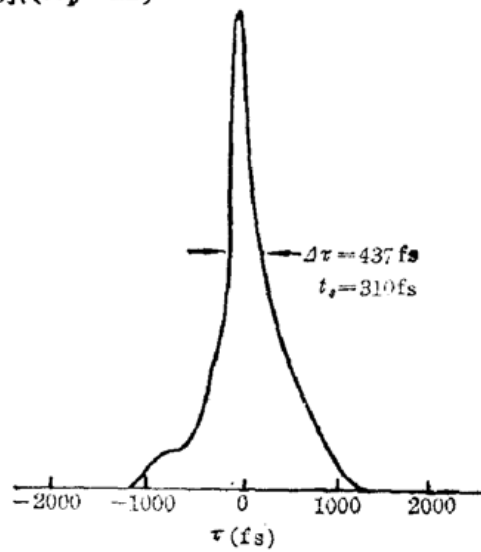


图6 乙醇溶液的背向 TERS 的无本底自相关函数

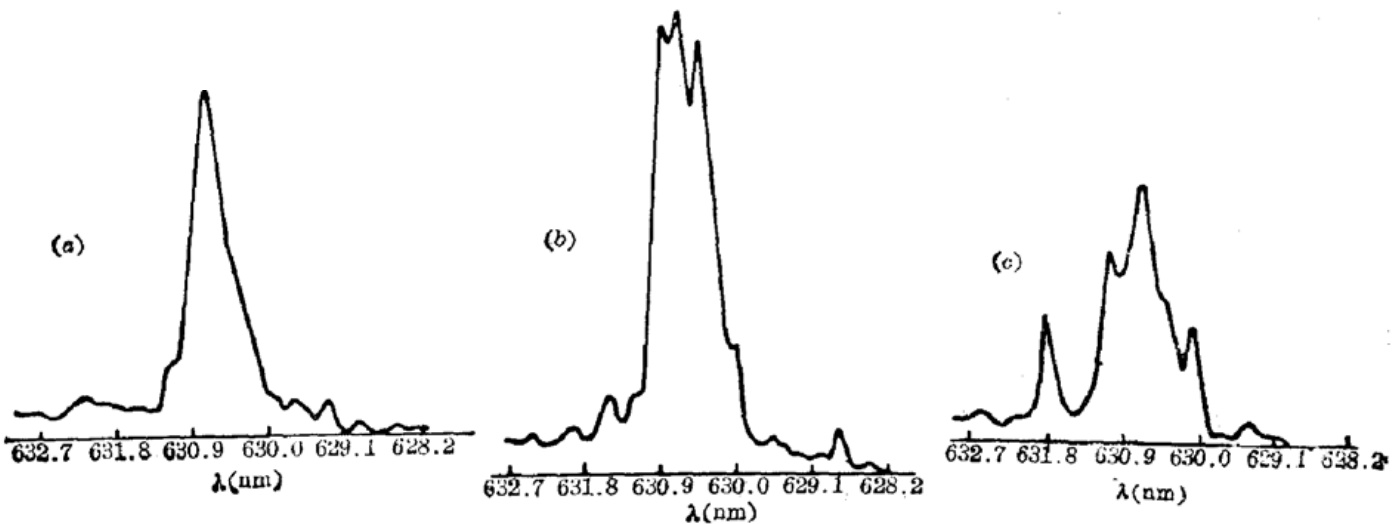
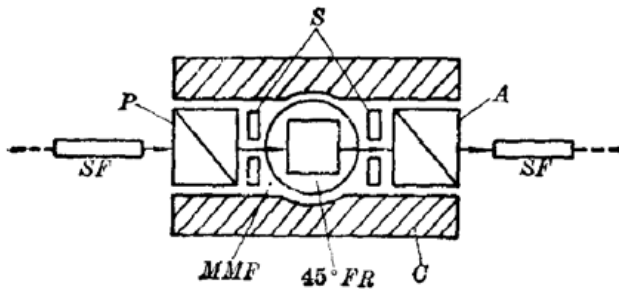


图7 一级斯托克斯脉冲的典型光谱与泵浦功率的关系

(a) $P_w \sim 1 \times 10^9 \text{ W/cm}^2$, (b) $P_w \sim 2 \times 10^9 \text{ W/cm}^2$, (c) $P_w \sim 4 \times 10^9 \text{ W/cm}^2$

(下转第22页)



SF—自聚焦棒状透镜； P—起偏器；
S—光闸； A—检偏器；
MMF—可调式磁场； 45°FR—45°Faraday 旋转器；
C—壳体

图5 近红外可调式磁光隔离器示意图

参 考 文 献

- 1 Kohroh Kobayashi *et al.*, *IEEE J. Quant. Electron.*, **QE-16**(1), 11 (1980)
- 2 T. Tamaki *et al.*, *J. Magn. Soc. Jpn.*, **9**, 125 (1985)
- 3 刘公强, 吴蓓, *光学学报*, **8**(2), 105 (1988)

(上接第 26 页)

线示于图 6。假设其线型为高斯型函数, 则计算的脉宽 ~ 310 fs。

2. TSRS 光的频谱特性的观察

前向受激散射斯托克斯脉冲的瞬态光谱其典型值如图 7 中 (a), (b) 和 (c) 所示, 图中对应的泵浦光功率分别为 $\sim 1 \times 10^9$ W/cm², $\sim 2 \times 10^9$ W/cm² 和 $\sim 4 \times 10^9$ W/cm²。曲线明显的反应了其光谱随泵浦光功率变化的分裂情况。当泵浦功率增加时其中心光谱峰朝短波长方向产生微小的移动, 光谱宽度增加, 光谱线产生分裂结构。也观察了其向后散射的喇曼光的瞬态光谱, 实验发现其光谱特性与前向散射没有明显差异。

当在乙醇溶液中加入 $\sim 1 \times 10^{-5}$ M 的若丹明 6G 时, 实验中观察到前向散射的喇曼光的峰值光谱位置基本不变, 而后向散射的喇曼光的光谱峰值位置则朝短波长方向漂移了约 0.2~0.3 nm, 这时无无论前向散射还是后向散射的喇曼光谱均产生不对称的分裂。

参 考 文 献

- 1 R. S. Adrain *et al.*, *Opt. Commun.*, **15** (2), 290 (1975)
- 2 R. L. Carman *et al.*, *Phys. Rev. A*, **2** (1), 60 (1970)
- 3 R. L. Carman *et al.*, *Phys. Rev. A*, **5** (1), 341 (1972)
- 4 W. H. Lowdermilk, G. L. Kachen, *Appl. Phys. Lett.*, **27** (3) 133 (1975)