

Ba 蒸气受激喇曼散射中的碰撞加宽效应

霍芸生 董景星 丁爱臻 魏运荣

(中国科学院上海光机所, 201800)

提要: 研究了缓冲气体分子所引起的 Ba 原子喇曼能级的碰撞加宽对于 XeCl 激光光泵 Ba 蒸气的喇曼增益系数及喇曼能量转换效率的影响。

关键词: 受激喇曼散射, 碰撞加宽, Ba 蒸气

Effects of collisional broadening on stimulated Raman scattering in Ba vapour

Huo Yunsheng, Dong Jingxing, Ding Aisheng, Wei Yunrong

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

Abstract: Studied here are collisional broadening of Raman energy levels of atomic barium by buffer-gas molecules, its effects on the Raman gain coefficient and Raman conversion efficiency.

Key words: stimulated Raman scattering, collisional broadening, barium vapour

一、引 言

金属蒸气电子能级的受激 Raman 散射为紫外波段的准分子激光到蓝绿光的频率转换提供了有效的手段,因而得到了较为广泛的研究^[1,2]。惰性气体常用于 Raman 池中作为缓冲气体。在铅、钡等金属蒸气的 Raman 转换实验中,观察到随着缓冲气体密度的增大,Raman 转换效率迅速下降^[3~5]。文献[3,4]的作者对其可能的机制仅提出过一些设想,这方面的研究工作尚有待于深入开展。

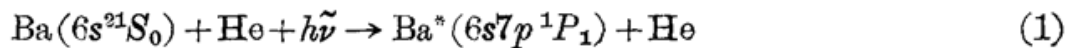
我们在 XeCl 激光光泵铅蒸气的受激 Raman 散实验中,曾提出缓冲气体分子对 Pb 原子喇曼能级的碰撞加宽可能导致了 Raman 转换效率的下降^[3]。本文较深入地研究了缓冲气体对 XeCl 激光在 Ba 蒸气中 Raman 转换功率的影响。在恒定的 Raman 转换效率($\eta=1\%$)条件下,所需的泵浦光强度随缓冲气体密度变化的实验结果表明,虽然存在着 Ba 原子对 XeCl 激光的碰撞诱导吸收,但缓冲气体对 Raman 能级的碰撞加宽所引起的 Raman 增益系数下降是 Raman 转换效率下降的主要原因。

二、实验结果及讨论

实验装置与文献[7]中所用装置基本相同。泵浦用宽带 XeCl 准分子激光脉冲能量约 300 mJ, 脉宽 30 ns (FWHM), 光束发散角约 4 mrad。此泵浦光束经 $f=1\text{ m}$ 的透镜聚焦于热区长度为 1 m 的钡 Raman 池中央, 焦斑处功率密度约 60 MW/cm^2 。前向 Raman 光束经 $f=1\text{ m}$ 透镜准直, 并经两块石英棱镜色散, 与泵浦光束分开。Raman 光能量用 LPE-1 型激光能量计测量。

2.1 Ba 蒸气对 XeCl 激光的碰撞诱导吸收

图 1 中, 波长为 308 nm 的 XeCl 准分子激光与钡原子的 $6s^2\ ^1S_0 \sim 6s7p\ ^1P_1$ 跃迁 (307.2 nm) 近于共振, 其失谐量 $\Delta \sim 80\text{ cm}^{-1}$, 远大于由原子间的碰撞持续时间 ($\sim 1\text{ ps}$) 所决定的“碰撞区域”的带宽 ($\sim 10\text{ cm}^{-1}$), 因此 Ba 原子直接吸收波长 308 nm 的光子的几率很小。但是由于此失谐量小于气体分子的平均动能 ($\sim 700\text{ cm}^{-1}$), 因此在 XeCl 激光光泵的 Ba 蒸气中, 除了 Raman 频移过程以外, 还存在着碰撞诱导吸收过程:



在我们以前的实验中已观察到 Ba 原子通过碰撞诱导过程跃迁到 $6s7p\ ^1P_1$ 后的串级跃迁所产生的波长为 472.6、648.3 及 582.6 nm 的受激辐射^[7]。钡原子对 XeCl 激光的碰撞诱导吸收对于 XeCl 激光在 Ba 蒸气中至波长为 475 nm 的喇曼光的转换效率可能产生影响。

当 Raman 池温度为 1000°C , 相应的 Ba 原子数密度约为 $4.6 \times 10^{16}\text{ cm}^{-3}$ 时, 所测得的 XeCl 激光通过 Ba Raman 池的透过率随缓冲气体 He、Ar 气压的变化示于图 2。测量过程

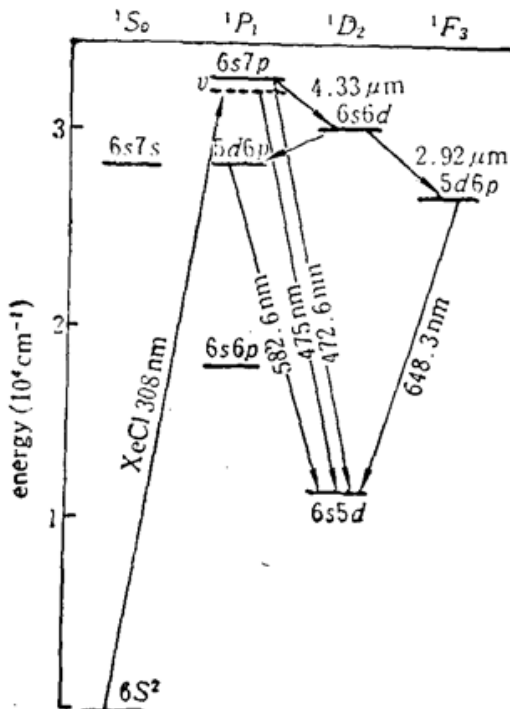


Fig. 1 Energy levels in atomic Ba relevant to Raman conversion and collision-induced absorption of XeCl laser radiation

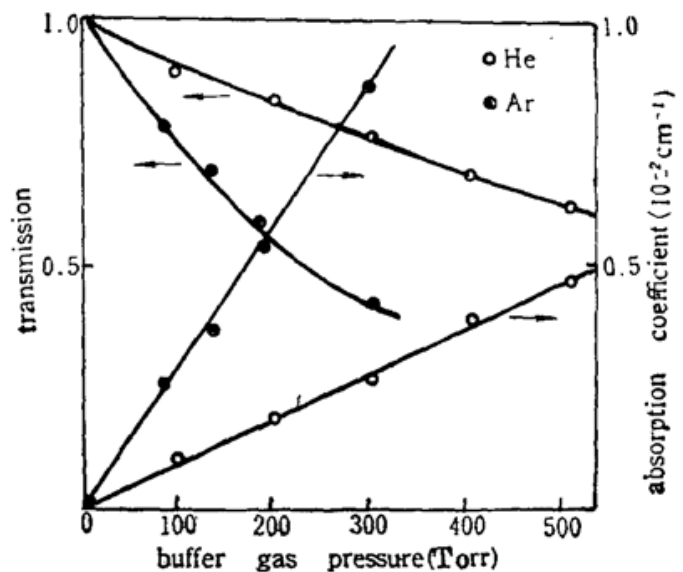


Fig. 2 Transmission and collision-induced absorption coefficient of XeCl laser radiation in Ba vapor as a function of buffer gas pressure. The incident XeCl laser energy and barium number density are 5 mJ and $4.6 \times 10^{16}\text{ cm}^{-3}$ respectively

中,入射的 XeCl 激光能量固定在 5 mJ, 远低于受激 Raman 散射(SRS)的阈值, 以避免 SRS 过程对测量结果的影响。图 2 还给出了由透过率曲线所算得的以 He 气及 Ar 气体缓冲气体时 Ba 蒸气的吸收系数 α 随气压的变化, 它们均随气压呈线性变化, $\alpha = \alpha p_{\text{buffer}}$ 。这是由于在两体碰撞条件下, Ba 原子对 XeCl 激光的碰撞诱导吸收过程(1)的速率 $k \propto N_{\text{Ba}} \cdot N_{\text{buffer}}$ 。由图 2 所示的测量结果得到 $\alpha_{\text{He}} = 0.95 \times 10^{-5} (\text{cm}^{-1} \cdot \text{Torr}^{-1})$, $\alpha_{\text{Ar}} = 3 \times 10^{-5} (\text{cm}^{-1} \cdot \text{Torr}^{-1})$ 。

2.2 SRS 强度随 He 气压及泵浦光强度的变化

图 3(a) 所示为 Ba 原子数密度为 $2.7 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$, 缓冲气体 He 气压为 10 Torr 条件下, SRS 强度随泵浦光强度的变化。泵浦光强度由在 Raman 池入射窗口前插入具有不同透过率的中性衰减片加以改变, 未经衰减的 XeCl 激光能量为 210 mJ。图 3(b) 中给出了在同样的 Ba 原子密度、泵浦光能量固定为 210 mJ 时, Raman 光能量随 He 气压的变化; 同时还给出了将泵浦光强度衰减 20 倍, 以远低于 SRS 阈值情况下所测得的 XeCl 激光通过 Ba Raman 池的透射系数随 He 气压的变化。由图 3 可见, 当 He 气压从 10 Torr 增加到 250 Torr 时, SRS 能量降低到原来的 5%, 而与此对应的 XeCl 激光的弱信号透过率仅下降了 16%。由图 3(a) 的测量结果可以看出 SRS 能量随泵浦光能量近似呈线性变化, 当泵浦光强度下降 16% 时, 相应的 Raman 光强度大体上亦应下降相同的数值。即当 He 气压由 10 Torr 增加到 250 Torr 时, 仅考虑 Ba 原子对 XeCl 激光的碰撞诱导吸收所能得到的 Raman 光能量应是实验中所测得的 Raman 光能量的 16 倍左右。因此缓冲气体气压增加时, Raman 光能量的下降主要不是由于对泵浦光的吸收所引起。

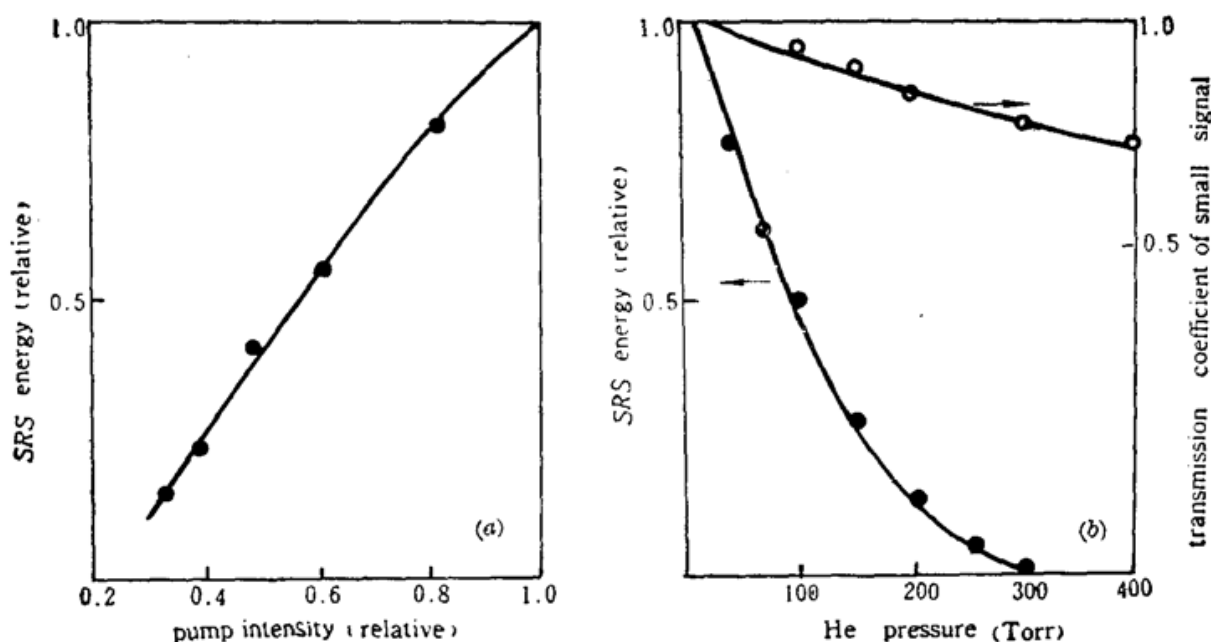


Fig. 3 SRS pulse energy from barium vapor cell as a function of incident XeCl laser energy (a), and of helium buffer gas pressure (b). The barium numbr density is $2.7 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$

Verma 等人曾提出缓冲气体气压增加时, Ba 蒸气 Raman 转换效率的下降可能是由于缓冲气体分子对 Ba 蒸气 Raman 终态的碰撞弛豫所致。但是文献[8]的实验数据表明, 在数百 Torr 量级的 He 气压条件下, He 对 Ba 原子亚稳态 $6s5d^1D_2$ 的碰撞弛豫速率常数约在 ms 量级。对于脉宽约 30 ns 的泵浦激光, 这样的弛豫过程不致于对 Raman 转换效率产生明显的影响。我们认为缓冲气体分子对 Ba 原子 Raman 能级的碰撞加宽是引起 Raman 转换效率下降

的主要原因。但由于金属蒸气自发 Raman 散射的线宽约为 0.1 cm^{-1} 量级^[9]，而实验中所用的 XeCl 准分子激光束多为自由振荡的宽带输出^[1~3]，其带宽约为几十个 cm^{-1} 。因此直接测量缓冲气体所引起的 Ba 原子 Raman 能级的碰撞加宽，并据此判断其是否为导致高缓冲气压条件下 Raman 转换效率下降的主要原因，将会有一定困难。

2.3 恒定 Raman 转换效率的 $E_{\text{pump}} \sim P_{\text{He}}$ 曲线

在对泵浦光的吸收系数为 a 的 Raman 介质中，通过传播长度 l 后的 Raman 光强 I_s 为^[10]

$$I_s(l) = AI_L(0) \cdot \exp\{g_R I_L(0) [1 - \exp(-al)]/a\} \quad (2)$$

其中 $I_L(0)$ 为 Raman 池入口处的泵浦光强。假定泵浦光脉冲波形近似为方波，则对于一恒定的能量转换效率 $E_s(l)/E_L(0) = 1\%$ ，须有

$$g_R I_L(0) [1 - \exp(-al)]/a = \text{const} \quad (3)$$

若定义一“有效作用长度” l'

$$l' = [1 - \exp(-al)]/a \quad (4)$$

则 Ba 蒸气对泵浦光的线性吸收等价于相互作用长度的减小， $l' < l$ 。且(3)式可变换为

$$g_R I_L(0) l' = \text{const} \quad (5)$$

如前所述 Ba 蒸气对 XeCl 激光的碰撞吸收系数 a 随缓冲气体气压线性增大。当 He 气压从 20 Torr 增加到 200 Torr 时， a 从 $1.9 \times 10^{-4} \text{ cm}^{-1}$ 增大到 $1.9 \times 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$ 。对于 $l = 1 \text{ m}$ 的 Ba Raman 池，其效果等价于 l' 从 0.99 m 缩短至 0.91 m，其相对变化量约 8%。如果缓冲气体对 Ba 蒸气 Raman 转换过程的影响确实是由对 Raman 能级的碰撞加宽所引起的 Raman 增益的下降， $g_R \propto p_{\text{He}}^{-1}$ ，且 l' 可近似视为常量，则由式(5)应有 $I_L(0) \propto p_{\text{He}}$ ，即为得到一恒定的 Raman 转换效率所需的泵浦光强随缓冲气体气压线性上升。

反之，若缓冲气体对 Raman 转换过程的主要影响是与 Ba 原子的碰撞所诱导的对泵浦激

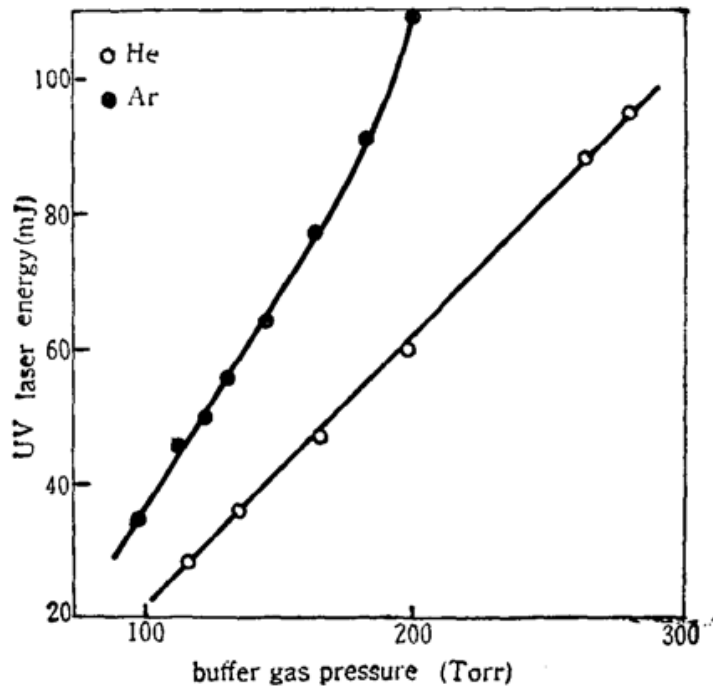


Fig. 4 Variation of incident XeCl laser energy required by maintaining the Raman conversion efficiency at one percent as a function of buffer gas pressure. The barium number density is $4.6 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$

光的吸收, 则(3)式中 g_R 应可视为常数, 对其中的指数函数取二级近似, 得到

$$I_L(0) \propto \left(1 - \frac{1}{2} \alpha_{\text{He}} l p_{\text{He}}\right)^{-1} \quad (6)$$

此时 $I_L(0)$ 应随 p_{He} 的增大而非线性地增长, 且其斜率 $dI_L(0)/dp_{\text{He}}$ 亦应随 p_{He} 的增大而增大。

对于 Raman 转换效率恒定为 1%, 所需的泵浦光能量随缓冲气体气压变化的测量结果示于图 4。实验中 Raman 池温度固定为 1000°C , 泵浦光强度通过在 Raman 池输入窗前分别插入透过率不同的中性衰减片加以改变。对于每一入射的 XeCl 激光强度, 改变缓冲气体的气压, 直至输出的 Raman 光能量是泵浦光能量的 1%。由图 4 的实验结果可见, 对于 He 气压在 $100 \sim 250$ Torr 范围内, 为维持 1% Raman 转换效率所需的泵浦光能量随 He 气压近似成线性上升, 显示缓冲气体对 Raman 能级的碰撞加宽引起 Raman 增益下降的特征。在图 4 中还给出了 1% Raman 效率所需的泵浦光能量随 Ar 气压 (P_{Ar}) 的变化。当 Ar 气压低于 150 Torr 时, E_{pump} 近似随 p_{Ar} 线性上升, 但在较高的 Ar 气压处, $E_{\text{pump}} \sim P_{\text{Ar}}$ 逐渐偏离线性, 且其斜率也随 P_{Ar} 而增大, 表明 Ba 原子对 XeCl 激光的碰撞诱导吸收对于 Raman 转换过程的影响逐渐增大。

参 考 文 献

- 1 R. Burnham, N. Djeu, *Opt. Lett.*, **3**, 215 (1978)
- 2 S. J. Brasnan *et al.*, *Opt. Lett.*, **7**, 154 (1982)
- 3 H. Rieger, *IEEE J. Quant. Electr.*, **QE-22**, 405 (1986)
- 4 R. D. Verma *et al.*, *J. Opt. Soc. Am. B*, **2**, 403 (1985)
- 5 Jie Zhang *et al.*, *Opt. Commun.*, **68**, 442 (1988)
- 6 Huo Yunsheng *et al.*, *Chinese Physics*, **7**, 1035 (1987)
- 7 霍芸生 *et al.*, *光学学报*, **8**, 673 (1988)
- 8 P. G. Whitkop *et al.*, *J. Chem. Phys.*, **72**, 1297 (1980)
- 9 D. C. Hanna *et al.*, *Nonlinear Optics of Free Atoms and Molecules* (Springer-Verlag Berlin Heidelberg New York, 1979), 220~239
- 10 A. Penzkofer *et al.*, *Progr. Quant. Electr.*, **6**, 55 (1979)