

四氯化碳和苯乙醇混合液液芯光纤中的 受激喇曼散射和四波混频*

陈逸清** 王 磊 邱明新

(上海市激光技术研究所, 上海 200233)

提要 用调 Q YAG 激光器的倍频光 ($\lambda = 532.1 \text{ nm}$) 在充有四氯化碳和苯乙醇混合液液芯光纤中观察到受激喇曼散射 (SRS) 和四波混频 (FWM) 现象, 对各条谱线的频率进行了标定, 并给出了一些理论分析。

关键词 受激喇曼散射, 四波混频, 液芯光纤

Stimulated Raman scattering and four-wave mixing in a hollow optical fiber filled with the mixture of carbon tetrachloride and phenylethanol

Chen Yiqing, Wang Lei, Qiu Mingxin

(Shanghai Institute of Laser Technology, Shanghai 200233)

Abstract Stimulated Raman scattering (SRS) and four-wave mixing (FWM) in a hollow optical fiber filled with the mixture of carbon tetrachloride and phenylethanol pumped by the frequency-doubling of a Q-switched YAG laser ($\lambda = 532.1 \text{ nm}$) have been observed. The frequencies of the SRS and FWM lines have been specified and the theoretical interpretations have also been given to a certain extent.

Key words stimulated Raman scattering, four-wave mixing, liquid-core optical fiber

1 引 言

液芯光纤将光波导技术与非线性光学效应结合起来, 由于液体比固体更容易更换, 而且很多液体具有较大的非线性光学系数 ($n_2 \approx 10^{-11} \sim 10^{-12} \text{ esu}$), 故可以较低的泵浦光强产生受激喇曼散射 (SRS)^[1,2]、受激瑞利翼散射 (SRWS)^[3]、四波混频 (FWM)^[4]、自聚焦^[5]等一系列非线性光学效应, 另外, 液体不象固体, 在强光下不易产生损伤, 因此, 液芯光纤有着广泛的研究内容。

在先前的实验中, 我们已分别在乙基苯^[6]、苯甲醇^[7]和苯乙醇^[8]等液芯光纤中研究了 SRS

收稿日期: 1992 年 1 月 7 日; 收到修改稿日期: 1992 年 2 月 17 日。

* 本实验为国家自然科学基金资助项目。

** 中国科学院上海冶金所信息功能材料国家重点实验室。

和非线性红移展宽,并在苯乙醇液芯光纤中测量了介质温度与喇曼谱线的非对称性展宽的关系,认为这种以红移为主的 Stokes 线展宽主要是由 SRWS 引起的。

当空心光纤中充有两种透明液体时,通过选取适当的浓度比,在这种混合液液芯光纤中不仅能获得这两种液体各自的 Stokes 线和反 Stokes 线,而且还能够观察到由这些 SRS 谱线与泵浦光之间通过 FWM 作用产生的新谱线。因此,利用 SRS 和 FWM 过程,以及这些谱线的展宽现象,就能在这种混合液液芯光纤中获得一种新的连续、相干辐射光。实验关键是选取这两种液体恰当的浓度比,倘若混合的浓度比大于或小于此值,则两种液体的同阶 Stokes 线的强度将相差很大,甚至只出现其中一种液体的 Stokes 线,而对另一种液体,此时由于泵浦光已被抽运,因此它的 Stokes 线就有可能得不到激发,也就不会产生这两种液体 SRS 谱线之间的混频作用。另外,由于选用的液芯光纤是以多模形式传输的,而模间色散 ΔK_w 可补偿介质色散 K_m ,因此,当两种液体的同阶 Stokes 线强度近似相等时,相对单模光纤情况而言,这两种液体的 Stokes 线和泵浦光之间就较易满足 FWM 的相位匹配条件。

2 实 验

由于四氯化碳(CCl_4)和苯乙醇(PE)是较活泼的喇曼介质,我们在实验中选择了这两种液体材料,配制成不同浓度比的混合液,经过反复实验,发现当四氯化碳和苯乙醇的浓度比为 5 : 4 时,两者同阶 Stokes 线的强度接近,将这一浓度比的混合液充入长 350 cm,内径 160 μm 的

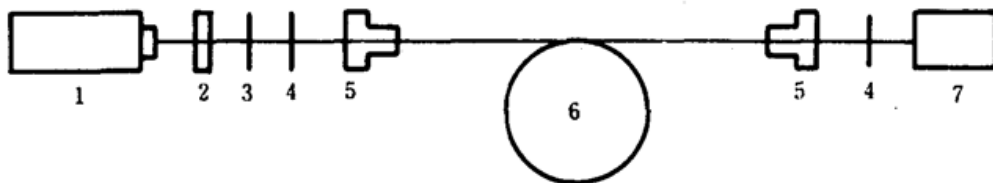


Fig. 1 Experimental setup for the SRS and FWM in a hollow optical fiber filled with the mixture of carbon tetrachloride and phenylethanol

1—Q-switched YAG laser; 2—KDP crystal; 3—filter; 4—lens; 5—liquid cell;
6—liquid-core optical fiber; 7—spectrometer

光纤中,光纤用玻璃制成,折射率为 1.472。实验装置如图 1 所示,以调 Q YAG 激光器为光源,将其产生的波长为 1.06 μm 的光通过 KDP 倍频晶体,得到波长为 532.1 nm 的绿光。将 532.1 nm 的光与 1.06 μm 的光用滤光片分离后,用一焦距为 10 cm 的透镜将其聚焦,并入射到液芯光纤的输入端。泵浦光的脉冲宽度为 10 ns,线宽 0.01 nm,脉冲重复率为 1 pps,光能量从 0 到 2 mJ 可调。光纤两端都浸在液池中,并充有相同的液体,避免了激光入射到光纤中由于折射率不匹配所引起的损耗。另外,在实验中应尽量避免光纤较大的弯曲,以减少弯曲所引起的不必要的损耗。最后,将从光纤输出端出射的光通过另一焦距为 15 cm 的透镜,聚焦到长 2 m 的光栅摄谱仪的入射狭缝上。

3 结果与讨论

调节光路,将 532.1 nm 的光很好地耦合进光纤输入端,此时在摄谱仪的屏幕上可同时观察到多价四氯化碳和苯乙醇的 Stokes 线和反 Stokes 线,以及其它一些新谱线,这些新谱线是

由这两种液体的 Stokes 线与泵浦光之间通过 FWM 作用产生的。图 2 是这种混合液液芯光纤

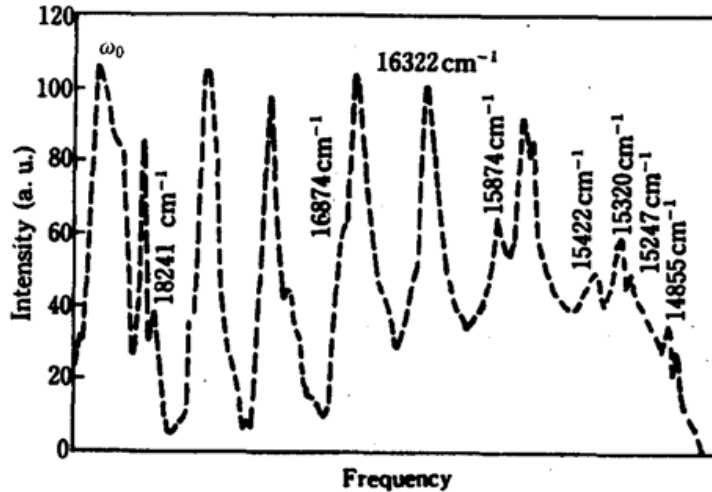


Fig. 2 Relative intensity curve of the SRS and FWM in a hollow optical fiber filled with the mixture of carbon tetrachloride and phenylethanol

中 SRS 和 FWM 谱的黑度扫描曲线。由于反 Stokes 线太弱,因而这里只给出了 Stokes 区域的黑度曲线。表 1 是这些谱线的波长、频率、相对于泵浦光的频移、非线性过程及种类。其中 ω_0 是泵浦光频率,其它 ω_i 的右下标代表第 i 阶 Stokes 线 (si) 或反 Stokes 线 (ai), $\Delta\omega$ (CCl_4) 和 $\Delta\omega$ (PE) 分别为四氯化碳和苯乙醇的喇曼频移。

在同一液芯光纤中,为了使两种喇曼液体能同时产生强度接近的同阶 Stokes 线,就必须使它们的增益系数近似相等。在液芯光纤中,Stokes 线的增益系数可表示为^[9]

$$g_s = \frac{\sigma_s N}{3hc\omega_s^3 n^2(\omega_s) \Delta\nu} \{1 - \exp[-hc(\omega_0 - \omega_s)/KT]\} \quad (1)$$

其中 ω_s 为 Stokes 线的频率, $(\omega_0 - \omega_s)$ 为喇曼频移, σ_s 为微分喇曼散射截面, N 为液体的分子密度, $\Delta\nu$ 为自发喇曼散射的线宽, $n(\omega_s)$ 为介质 Stokes 线的折射率, h 为 Plank 常数, T 为绝对温度, c 为光速, 上式指出, Stokes 线的增益系数正比于分子密度 N 和微分喇曼散射截面 σ_s 之积。因此,通过改变四氯化碳和苯乙醇的浓度比就可以实现 $g_s(\text{CCl}_4) \approx g_s(\text{PE})$, 即两者液体同阶 Stokes 线的强度近似相等。

从表 1 可见,频率为 14855 cm^{-1} , 15247 cm^{-1} , 15320 cm^{-1} , 15422 cm^{-1} , 15874 cm^{-1} , 16322 cm^{-1} , 16874 cm^{-1} , 18241 cm^{-1} 和 19336 cm^{-1} 的谱线均不是四氯化碳或苯乙醇的 Stokes 线和反 Stokes 线,而是由它们的 Stokes 线与泵浦光之间通过 FWM 产生的新谱线。FWM 是光纤中一种较为重要的三阶非线性过程。在本实验中,混合液液芯光纤中同时存在 SRS 和 FWM 过程,但是,正如图 2 所示的实验结果,Stokes 线的强度比反 Stokes 线和 FWM 谱线强,说明在这种情况下 SRS 过程强于 FWM 过程。这是因为在光纤中相位匹配 ΔK 一般不容易达到其最佳值 ΔK_{max} , 使 FWM 具有最大的增益系数^[10]:

$$\Delta K_{\text{max}} = \frac{3}{2} \epsilon_0 \chi_3 \sum_{i=1}^3 \sum_{m=1}^4 K_m \omega_m I_{mi} P_i \quad (2)$$

其中 ϵ_0 为介电常数, χ_3 为三阶非线性极化率, ω_m 为各谱线频率, P_i 为泵浦光或 SRS 谱线的强度, I_{mi} 为谱线之间相互作用参量, 及

$$K_m = \begin{cases} 1 & m = 1, 2 \\ -1 & m = 3, 4 \end{cases} \quad (3)$$

此外, FWM 谱线的强度除了取决于相位匹配 ΔK 外, 还与参与混频过程的其它三条谱线的强度有关。

Table 1 Frequency-shift relative to the pump light

No.	Wavelength (nm)	Frequency (cm ⁻¹)	Frequency-shift relative to the pump light (cm ⁻¹)	Nonlinear process *	Type **
1	667.9	14752	-4041	$\omega_{s4}(\text{PE}) = \omega_{s4}(\text{PE}) - \Delta\omega(\text{PE})$	S
2	673.2	14855	-3938	$\omega_F = \omega_{s2}(\text{CCl}_4) + \omega_{s3}(\text{PE}) - \omega_0$	FWM
3	655.9	15247	-3546	$\omega_F = \omega_{s1}(\text{CCl}_4) + \omega'_{s1}(\text{PE}) - \omega_0$	FWM
4	652.7	15320	-3473	$\omega_F = \omega_{s1}(\text{CCl}_4) + \omega_{s3}(\text{PE}) - \omega_0$	FWM
5	648.4	15422	-3371	$\omega_F = \omega_{s3}(\text{CCl}_4) + \omega_{s2}(\text{PE}) - \omega_0$	FWM
6	635.8	15727	-3066	$\omega'_{s1}(\text{PE}) = \omega_0 - \Delta\omega'(\text{PE})$	S
7	633.9	15776	-3017	$\omega_{s3}(\text{PE}) = \omega_{s2}(\text{PE}) - \Delta\omega(\text{PE})$	S
8	629.9	15874	-2919	$\omega_F = \omega_{s2}(\text{CCl}_4) + \omega_{s2}(\text{PE}) - \omega_0$	FWM
9	612.7	16322	-2471	$\omega_F = \omega_{s2}(\text{CCl}_4) + \omega_{s2}(\text{PE}) - \omega_0$	FWM
10	595.8	16785	-2008	$\omega_{s2}(\text{PE}) = \omega_{s1}(\text{PE}) - \Delta\omega(\text{PE})$	S
11	592.6	16874	-1919	$\omega_F = \omega_{s2}(\text{CCl}_4) + \omega_{s1}(\text{PE}) - \omega_0$	FWM
12	576.9	17334	-1459	$\begin{cases} \omega_{s3}(\text{CCl}_4) = \omega_{s2}(\text{CCl}_4) - \Delta\omega(\text{CCl}_4) \\ \omega_F = \omega_{s1}(\text{CCl}_4) + \omega_{s1}(\text{PE}) - \omega_0 \end{cases}$	S FWM
13	562.0	17795	-998	$\omega_{s1}(\text{PE}) = \omega_0 - \Delta\omega(\text{PE})$	S
14	559.2	17882	-911	$\omega_{s2}(\text{CCl}_4) = \omega_{s1}(\text{CCl}_4) - \Delta\omega(\text{CCl}_4)$	S
15	548.2	18241	-552	$\omega_F = \omega_0 - \omega_{s1}(\text{CCl}_4) + \omega_{s1}(\text{PE})$	FWM
16	545.5	18333	-460	$\omega_{s1}(\text{CCl}_4) = \omega_0 - \Delta\omega(\text{CCl}_4)$	S
17	532.1	18793	0	ω_0 (pump light)	
18	519.5	19248	455	$\omega_{s1}(\text{CCl}_4) = 2\omega_0 - \omega_{s1}(\text{CCl}_4)$	AS
19	517.2	19336	543	$\omega_F = \omega_0 + \omega_{s1}(\text{CCl}_4) - \omega_{s1}(\text{PE})$	FWM
20	505.4	19787	994	$\omega_{s1}(\text{PE}) = 2\omega_0 - \omega_{s1}(\text{PE})$	AS

* $\Delta\omega(\text{CCl}_4) = 460 \text{ cm}^{-1}$, $\Delta\omega(\text{PE}) = 1000 \text{ cm}^{-1}$, $\Delta\omega'(\text{PE}) = 3035 \text{ cm}^{-1}$;

** 根据实验的具体情况, 这里将观察到的谱线种类分为: Stokes 线(S), 反 Stokes 线(AS), 及由 FWM 产生的谱线(F)。

最后, 从图 2 上可明显地看到, 四氯化碳和苯乙醇这两种液体 Stokes 线的超常展宽和 FWM 过程使输出的谱线从苯乙醇第二阶 Stokes 线(595.8 nm)后几乎连接在一起, 因而利用这一现象可获得宽波带可调谐的相干辐射光。另外, 在苯乙醇第三阶 Stokes 线处出现双峰, 频率分别为 15776 cm^{-1} 和 15727 cm^{-1} , 通过查找有关 Raman 光谱图集, 发现苯乙醇除了在频移 $\Delta\omega(\text{PE}) = 1000 \text{ cm}^{-1}$ 处有一最强的 Raman 峰外, 在频移 $\Delta\omega'(\text{PE}) = 3035 \text{ cm}^{-1}$ 处还有一个次强

的 Raman 峰,因此可以断定苯乙醇第三阶 Stokes 线处的双峰是由频移为 1000 cm^{-1} 的第三阶 Stokes 线和频移为 3053 cm^{-1} 的第一阶 Stokes 线引起的。而频率为 15320 cm^{-1} 和 15247 cm^{-1} 的谱线则是由上面这两条 Stokes 线分别与泵浦光和四氯化碳的第一阶 Stokes 线之间通过 FWM 产生的。

感谢中国科学院上海冶金所信息功能材料国家重点实验室徐兴龙、张顺开、徐宏来、沈鸿烈等同志的大力帮助。

参 考 文 献

- 1 E. P. Ippen, *Appl. Phys. Lett.*, **16**(8), 308(1970)
- 2 J. Stone, *Appl. Phys. Lett.*, **26**(4), 163(1975)
- 3 N. Bloembergen *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **16**, 81(1966)
- 4 Y. Chen *et al.*, *Opt. Lett.*, **16**(19), 1469(1991)
- 5 P. L. Baldeck *et al.*, *Opt. Lett.*, **12**(6), 588(1987)
- 6 M. Qiu *et al.*, *Opt. Commun.*, **76**(6), 472(1990)
- 7 M. Qiu *et al.*, *Appl. Opt.*, **30**(27), 3852(1991)
- 8 陈逸清,王磊 *et al.*, *光学学报*, **12**(6), 506(1992)
- 9 A. Yariv, "Quantum Electronics", Chapter 18, 479, John Wiley & Sons, Inc., (2nd ed.) 1975
- 10 Y. Chen, *J. Opt. Soc. Am. B*, **6**(11), 1986(1989)