

反斯托克斯拉曼转换增益系数的最佳化

霍芸生

T. Yagi, K. Shimizu

(中国科学院上海光机所, 上海 201800)

(Institute of Research and Innovation, Laser Laboratory, Japan)

摘要 研究了反斯托克斯拉曼转换与受激拉曼散射之间的竞争过程, 讨论了反斯托克斯拉曼转换增益系数的最佳化。

关键词 VUV 相干辐射, 反斯托克斯拉曼转换

1 引 言

真空紫外相干辐射(VUV)在原子和分子物理、等离子体物理及激光化学等领域中有广泛的应用。用准分子激光器的紫外激光辐射经反斯托克斯拉曼频移, 提供了一种简便而有效的产生 VUV 相干辐射的手段^[1~4]。由于氢气的拉曼增益系数高, 且色散率较低而拉曼频移量较大 (4155 cm^{-1}), 特别是 H_2 分子的 $X \rightarrow B$ 跃迁的吸收峰 ($\lambda \sim 110 \text{ nm}$) 已很接近 VUV 光谱区域的短波限, 对于大部分 VUV 光谱区域, H_2 的吸收系数很低, 因而氢气常用于产生 VUV 相干辐射的反斯托克斯拉曼散射实验中。本文用 KrF 准分子激光器的 248 nm 激光辐射, 通过在 H_2 中的 11 阶反斯托克斯拉曼频移, 得到了波长为 116 nm 的 VUV 相干辐射。并通过一组描述聚焦泵浦光束的受激拉曼散射及四波混频过程的波动方程进行数值求解, 讨论了反斯托克斯拉曼转换增益的最佳化。

2 反斯托克斯拉曼频移的实验结果

我们进行了 KrF 准分子激光在 H_2 中的反斯托克斯拉曼频移的实验。得到了波长为 116 nm 的反斯托克斯 VUV 相干辐射。实验中所用 KrF 准分子激光束的脉冲能量及脉宽分别为 50 mJ 和 20 ns (FWHM), 光束发散角约为 0.1 mrad , 经焦距为 1 m 的透镜聚焦于 H_2 拉曼池的中央, 焦斑处的功率密度估计为 $2 \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$ 。在实验中所测得的各个阶次反斯托克斯辐射 AS_n 的波长及其能量转换效率如图 1 所示。其能量转换效

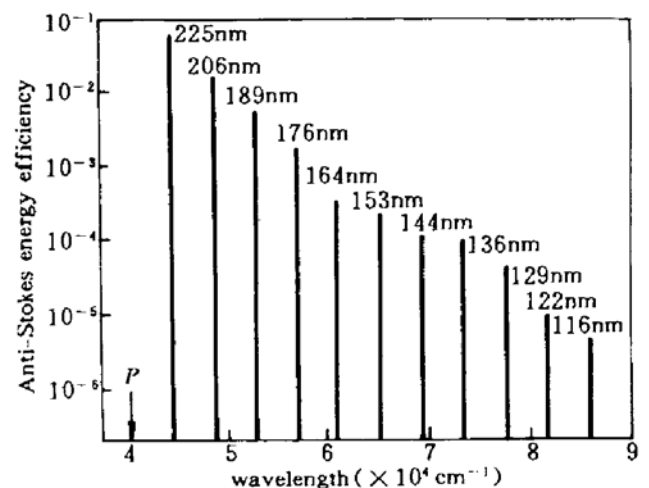


Fig. 1 Energy conversion efficiency of different anti-Stokes orders to the incident laser energy of 50 mJ and H_2 pressure of 1.8 bar

率随反斯托克斯阶次的升高而减小。对于 3 个最低阶次 AS1, AS2 及 AS3 的能量转换效率分别为 4.6%, 1.3% 和 0.33%, 这表示 6% 以上的入射激光能量转换成了反斯托克斯辐射。AS11 的能量转换效率为 5.5×10^{-6} 。对于 50 mJ 的 KrF 泵浦激光能量, 相应的 AS11 的脉冲能量约为 0.28 μ J。

各阶反斯托克斯光束的能量转换效率随 H_2 气压的变化如图 2 (a) 所示。反斯托克斯效率对氢气压的依赖关系已有不少报道^[2~5]。它们通常将此依赖关系归因于 H_2 气压过高时将导致色散的增加, 而当 H_2 气压过低时, 拉曼增益系数亦随之下降。因此当 H_2 气压从 7 bar 减小到 5 bar 时, AS3 效率的增加可解释为由于 H_2 色散率的降低, 因而可以得到更好的位相匹配。而当 H_2 气压从 5 bar 减小到 3 bar 时, 拉曼增益 g_R 的下降导致了 AS3 效率的降低。但是当 H_2 气压及 g_R 进一步减小时, AS3 转换效率迅速增大, 并在 H_2 气压为 1.8 bar 时达到了另一个峰值。从图 2 (a) 中还可看到, 其他一些高阶反斯托克斯也在大致同样的 H_2 气压 (1.8 bar) 处达到峰值。类似的实验结果在以前的一些实验工作里也曾观察到^[1,3], 但此现象不如本文的结果这样明显, 对其机理尚未进行过深入的探讨。

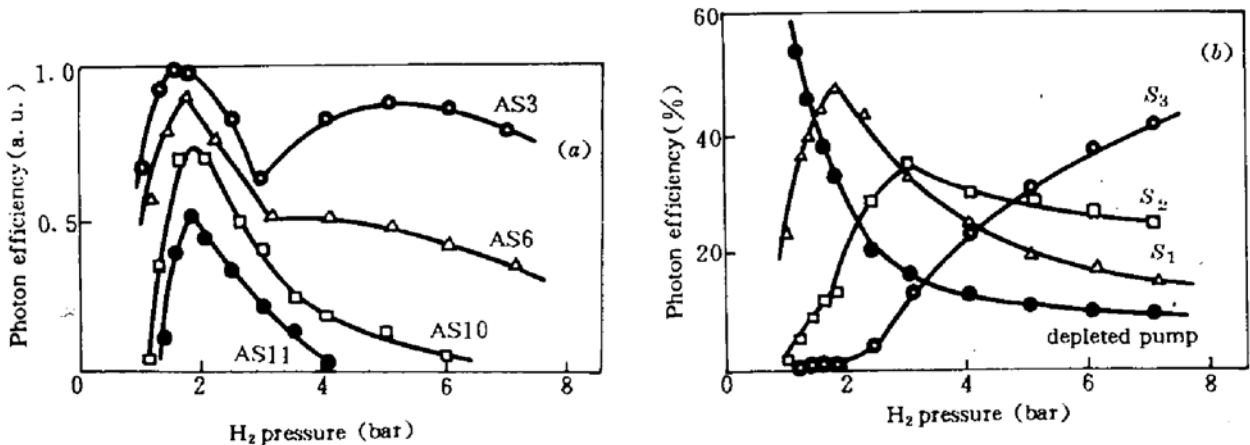


Fig. 2 Experimental pressure dependence of Raman conversion to different anti-Stokes and Stokes orders at an incident laser energy of 50 mJ

图 2 (b) 给出了基波及最低的三阶斯托克斯波 S_1 , S_2 及 S_3 的转换效率随 H_2 气压的变化。 S_1 在 H_2 气压为 1 bar 左右达到其阈值后, 随着 H_2 气压的升高及拉曼增益的增大, 其强度迅速增大。与此同时, 由基波及 S_1 的四波混频过程产生的二阶斯托克斯 (S_2) 也开始出现, 并随着 H_2 气压而增加。当 H_2 气压为 1.8 bar 时, S_1 及 S_2 的转换效率分别为 50% 和 13%。当 H_2 气压及拉曼增益进一步增大时, S_2 强度迅速增大, 而 S_1 强度开始下降, 这标志着受激拉曼散射已支配着 S_1 - S_2 的能量转换过程。比较图 2 (a) 和 (b), 可以看到 S_1 及各反斯托克斯阶次在大致相同的 H_2 气压处达到峰值。因此可以认为, 由于基波及一阶斯托克斯波在产生反斯托克斯波的四波混频中起着重要的作用^[1,2], 一阶斯托克斯波由 S_1 - S_2 受激拉曼转换产生的倒空对反斯托克斯波的产生有着重大的影响, 并可能决定着高阶反斯托克斯产生的最佳增益条件。下面我们将通过对波动方程的数值求解来进一步探讨反斯托克斯拉曼散射的增益最佳化。

3 波动方程及数值求解

在泵浦激光为平行光束条件下, 第 n 阶反斯托克斯光束的振幅 E_{Asn} 满足方程^[1]

$$\frac{\partial E_{ASn}}{\partial Z} = \frac{\omega_{ASn}}{\omega_{S_1}} \frac{g_R}{2} [E_0 E_{S_1} E_{AS(n-1)} - E_{AS(n-1)}^2 E_{ASn}] \quad (1)$$

其中 ω_{ASn} , ω_{S_1} 分别为第 n 阶反斯托克斯及一阶斯托克斯波的频率。泵浦光束为聚焦光束的波动方程通常是很繁杂的,但若假设泵浦光束及所产生的斯托克斯与反斯托克斯的强度在与传播方向相垂直的平面内均匀分布,则由在光束传播方向相距为 dZ 的两截面之间的电磁场能量守恒关系可得^[6].

$$\frac{\partial E_{ASn}}{\partial Z} = \frac{\omega_{ASn}}{\omega_{S_1}} \frac{g_R}{2} [E_0 E_{S_1} E_{AS(n-1)} - E_{AS(n-1)}^2 E_{ASn}] - \frac{E_{ASn}}{2A} \frac{\partial A}{\partial Z} \quad (2)$$

其中 $A(z)$ 为光束的横截面积。对于一至三阶斯托克斯波及泵浦光的振幅 E_{S_1} , E_{S_2} , E_{S_3} 及 E_0 , 相应的微分方程为

$$\frac{\partial E_0}{\partial Z} = \frac{\omega_0}{\omega_{S_1}} \frac{g_R}{2} [E_{AS1}^2 E_0 - E_{S_1}^2 E_0 - E_{S_1}^2 E_{S_2} - E_{S_1} E_{S_2} E_{S_3}] - \frac{E_0}{2A} \cdot \frac{\partial A}{\partial Z} \quad (3)$$

$$\frac{\partial E_{S_1}}{\partial Z} = \frac{g_R}{2} [E_0^2 E_{S_1} - E_{S_1} E_{S_2}^2 - E_{S_2}^2 E_{S_3} + E_0 E_{S_2} E_{S_3} - E_{AS1} E_0^2] - \frac{E_{S_1}}{2A} \cdot \frac{\partial A}{\partial Z} \quad (4)$$

$$\frac{\partial E_{S_2}}{\partial Z} = \frac{\omega_{S_2}}{\omega_{S_1}} \frac{g_R}{2} [E_{S_1}^2 E_{S_2} - E_{S_2} E_{S_3}^2 + E_0 E_{S_1}^2 - E_0 E_{S_1} E_{S_3}] - \frac{E_{S_2}}{2A} \cdot \frac{\partial A}{\partial Z} \quad (5)$$

$$\frac{\partial E_{S_3}}{\partial Z} = \frac{\omega_{S_3}}{\omega_{S_1}} \frac{g_R}{2} [E_{S_2}^2 E_{S_3} + E_{S_1} E_{S_2}^2 + E_0 E_{S_1} E_{S_2}] - \frac{E_{S_3}}{2A} \cdot \frac{\partial A}{\partial Z} \quad (6)$$

在方程(3)~(6)中,既包括了由受激拉曼散射逐级产生高阶斯托克斯辐射的过程,也含有由四波混频而产生二阶及三阶斯托克斯的机制。对于聚焦泵浦光束在低气压氢气中的受激拉曼散射,四波混频对于高阶斯托克斯分量的出现有很大影响^[7]。

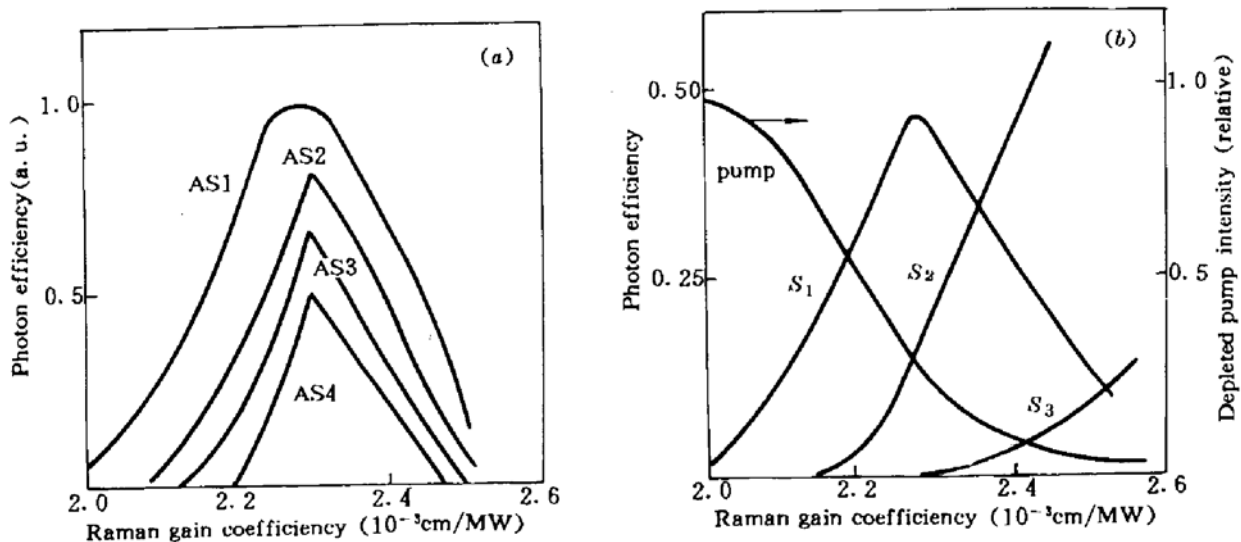


Fig. 3 Calculated Raman-gain dependence of Raman conversion to different anti-Stokes (a) and Stokes orders (b)

对于方程组(2)~(6)采用四阶 Runge-Kutta 方法进行数值求解。对于 1~4 阶反斯托克斯波的相对强度,1~3 阶斯托克斯波的转换效率,以及被倒空的泵浦光束的强度随拉曼增益系数 g_R 而改变的计算结果分别示于图 3 的(a)和(b)。计算中作为输入数据的泵浦光束参数基本

上与实验中所用的 KrF 泵浦光束相同,即假定激光脉冲能量为 50 mJ,光束发散角为 0.1 mrad,经 $f = 1$ m 的透镜聚焦于氢拉曼池的中央。但为减少计算量,假定输入的激光脉冲为持续时间为 20 ns 的方波。

由图 3 可以看到,一至四阶反斯托克斯波与一阶斯托克斯波随拉曼增益系数的增加呈现类似的变化规律,并在大致相同的拉曼增益系数 ($g_R \sim 2.3 \times 10^{-3}$ cm/MW) 处达到其峰值,与此相应的 H_2 气压约为 1.3 bar。当拉曼增益 g_R 继续增大时,由图 3(b) 可见,强烈的 $S_1 \sim S_2$ 拉曼转换,抑制了 S_1 的增大,并继而使其倒空,而反斯托克斯光束的强度亦随之下降。

文献[1]曾对泵浦光为平行光束的斯托克斯及反斯托克斯波的耦合方程数值求解,结果表明泵浦光束的倒空对于反斯托克斯波的产生不致产生显著的影响。本文示于图 3 的计算结果则表明,一阶斯托克斯光束的倒空对于反斯托克斯波的产生有重要影响,并且在一定条件下,例如本实验中所用的较低 H_2 气压及较低的色散率条件下,决定了产生反斯托克斯光束的最佳增益系数。虽然随着二阶斯托克斯光束 (S_2) 的增强,通过 S_2 与 S_1 的混频也能产生基波并可能进而逐级产生各阶反斯托克斯波。但是由于已经存在的强烈的 $E_0 \sim E_{S_1}$ 受激拉曼散射,因此由 S_1 及 S_2 混频所产生的基波仍将为受激拉曼转换而抽空。同时在实验中已观察到当泵浦光被倒空时, S_1 的发散角将增大,而其强度显著降低^[8],并导致二阶斯托克斯的理论计算值比实验值高。同样可以预料,当 S_1 被 $S_1 \sim S_2$ 拉曼转换倒空时, S_2 的方向性将更差,而其强度将更低。因此在一维方程组(2)~(6)对实验结果的模拟中,未曾包括 S_1 及 S_2 的混频对反斯托克斯波产生的影响。虽然图 3 所示的计算结果与图 2 中给出的实验结果定性一致,但为了在定量方面亦能符合得更好,则应考虑泵浦光束在空间的不均匀分布、脉冲强度及光束质量随时间的变化等因素,进一步的工作需采用二维或三维的波动方程组。

参 考 文 献

- 1 Brink D. J., Proch D. . *Opt. Lett.*, 1982, 7 : 494
- 2 Döbele H. F. *et al.* . *Appl. Phys.*, 1987, B42 : 67
- 3 Wallmeier H., Zacharias H. . *Appl. Phys.*, 1988, B45 : 263
- 4 Takahashi A. *et al.* . *Jpn. J. Appl. Phys.*, 1987, 26 : L954
- 5 Wilke V., Schmidt W. . *Appl. Phys.*, 1979, 18 : 177
- 6 Marglith E., Sutton G. . *J. Appl. Phys.*, 1986, 59 : 327
- 7 Huo Y. *et al.* . *J. Appl. Phys.*, 1992, 71 : 45
- 8 J. L. Caxlsten *et al.* . *J. Opt. Soc. Am.*, 1986, B3 : 1476

Optimization of the Gain Coefficient in Anti-Stokes Raman Conversion

Huo Yunsheng

(Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Academia Sinica, Shanghai 201800)

T. Yagi K. Shimizu

(Institute of Research and Innovation, Laser Laboratory, Japan)

Abstract The competition between stimulated Raman scattering and anti-Stokes Raman conversion is studied. The optimization of the Raman gain coefficient in anti-Stokes conversion is discussed.

Key words VUV coherent radiation, anti-Stokes Raman conversion