

# KrF 激光在氢-惰性气体体系中的反斯托克斯拉曼转换

霍芸生 丁爱臻

(中国科学院上海光机所, 上海 201800)

**提要** 通过氢-惰性气体体系中惰性气体分子对氢拉曼能级的碰撞加宽所引起的对拉曼增益系数的控制, 抑制了由一阶向二阶斯托克斯的受激拉曼转换, 提高了低阶反斯托克斯拉曼转换的效率。

**关键词** 反斯托克斯拉曼转换, KrF 激光, 缓冲气体

## 1 引言

准分子激光器的紫外激光辐射在氢气中的反斯托克斯拉曼散射提供了简便而有效的产生真空紫外相干辐射的技术<sup>[1,2]</sup>。反斯托克斯拉曼转换是一种基于泵浦激光束、斯托克斯及反斯托克斯光束之间的四波混频过程。支配着逐级产生较高的反斯托克斯阶次的微分方程为<sup>[1]</sup>

$$\frac{dE_n}{dZ} = \frac{\omega_n}{\omega_{s1}} \frac{g}{2} E_{n-1} (E_0 E_{s1} - E_{n-1} E_n) \quad (1)$$

其中  $E_n$ ,  $E_0$  及  $E_{s1}$  分别为第  $n$  阶反斯托克斯 ( $AS_n$ ), 泵浦激光及一阶斯托克斯 ( $S_1$ ) 光束的振幅,  $g$  为拉曼增益系数,  $\omega_n$  及  $\omega_{s1}$  则分别为  $AS_n$  及  $S_1$  光束的角频率。由式(1)可见, 乘积  $gE_0E_{s1}$  在逐级产生高阶反斯托克斯波的过程中起着关键的作用。我们以前的实验及理论计算工作表明<sup>[3]</sup>, 由一阶斯托克斯 ( $S_1$ ) 至二阶斯托克斯 ( $S_2$ ) 的受激拉曼散射所引起的  $S_1$  的倒空对于反斯托克斯拉曼转换的产生有着重要的影响。因此适当控制拉曼增益系数的大小, 避免一阶斯托克斯波被  $S_1 - S_2$  的受激拉曼转换所倒空将有助于提高反斯托克斯拉曼转换的效率。

由于拉曼增益系数  $g$  与产生受激拉曼散射的气体分子密度  $N_n$  成正比, 而与拉曼跃迁的线宽  $\Delta\nu$  成反比<sup>[4]</sup>, 即  $g \propto N_n/\Delta\nu$ , 因此在氢气中添加惰性气体作为缓冲气体, 可以通过惰性气体分子对  $H_2$  分子拉曼能级的碰撞加宽而对  $H_2$  的拉曼增益产生影响。文献[4]报道了 XeCl 准分子激光在  $H_2$  中的受激拉曼散射实验中, 在级联拉曼散射导致  $S_1$  倒空的条件下, 通过添加 Ar 气作缓冲气体以控制拉曼增益系数, 抑制了  $S_1 - S_2$  的拉曼转换, 提高了一阶斯托克斯的产生效率。因此可预期在  $H_2$  气体中添加缓冲气体亦可能会提高反斯托克斯拉曼转换的效率。本文研究了以 Ne, Ar, Kr 等气体作缓冲气体, 对于 KrF 激光在氢气中反斯托克斯拉曼转换的影响。

## 2 实验装置

实验装置已于文献[3]中作过简要介绍。一台 Lambda Physik EMG 160 型注入锁定 KrF 准

分子激光器输出的 248 nm 激光脉冲能量约 200 mJ, 脉宽约 20 ns, 光束发散角约 0.1 mrad. KrF 激光束由  $f = 100$  cm 的石英透镜聚焦于长度为 110 cm 的  $H_2$  拉曼池中央。在拉曼池输入窗口前置一截面为  $5 \times 7$  mm<sup>2</sup> 的矩形光阑将输入到拉曼池中的泵浦激光能量减小到 50 mJ, 以避免在拉曼管中形成光学击穿。焦斑处的激光强度估计为  $2.5 \times 10^{10}$  W/cm<sup>2</sup>。在拉曼池长度一半处的侧面安装了一对观察窗以监视可能发生的光学击穿。从拉曼池的  $MgF_2$  窗口输出的光束经  $CaF_2$  棱镜色散后进行激光能量的测量。

### 3 实验结果和讨论

图 1 给出了在泵浦激光脉冲能量为 50 mJ, 拉曼池中  $H_2$  气压为 3 bar 条件下, 反斯托克斯及斯托克斯光束的转换效率随着在  $H_2$ -Ne 体系中 Ne 气压的变化。当 Ne 气压由零增加到 2 bar 时, 二阶斯托克斯  $S_2$  的转换效率由 38% 减小到 21%, 而  $S_1$  的效率则由 32% 提高到 47%, 这与 Luckes 等人在  $H_2$ -Ar 体系中观察到的结果定性一致。而我们对于反斯托克斯输出能量的测量结果则表明, 一至三阶反斯托克斯  $AS_1$ ,  $AS_2$  及  $AS_3$  的转换效率分别提高了 65%, 75% 及 32%。在泵浦光强保持不变的条件下, 图 1 中所示的在拉曼池中未能转换成拉曼光的那部分泵浦光能量 (depleted pump) 随着 Ne 气压的上升而增加, 则表征着  $H_2$ -Ne 体系的拉曼增益系数随着 Ne 气压的增加而下降<sup>[4]</sup>。由于本实验中产生受激拉曼散射的  $H_2$  分子数密度  $N_R$  保持不变, 因而此时拉曼增益系数的下降可以归结为 Ne 分子对于  $H_2$  拉曼能级的碰撞加宽所引起, 与文献[4]中已作较详细论证的 Ar 分子对于  $H_2$  拉曼能级的碰撞加宽导致拉曼增益系数的下降相类似。因此图 1 的结果进一步证明了一阶斯托克斯分量  $S_1$  在通过四波混频产生反斯托克斯拉曼转换中的重要作用, 以及通过惰性气体分子对  $H_2$  拉曼能级的碰撞加宽可以达到抑制  $S_1 - S_2$  的拉曼转换, 从而增加反斯托克斯输出的目的。

我们在实验中还采用不同的惰性气体作缓冲气体, 研究了它们对于  $H_2$  中的反斯托克斯产生效率的影响。基本的实验结果是: 对于相同的缓冲气体气压, 若缓冲气体的分子量越大, 则它们对于反斯托克斯效率的影响亦越大, 这可能是由于分子量较大的惰性气体分子与  $H_2$  分子有着较大的碰撞截面。但在另一方面, 由于从 Ne 到 Kr 随着原子序数的增大, 电离电位依次降低, 光学击穿的问题也随之变得严重, 这就限制了所能使用的惰性气体气压。在图 2 中分别给出了用 Ne, Ar, Kr 作缓冲气体时, 二阶反斯托克斯  $AS_2$  的转换效率随惰性气体气压的变化。与 Ne, Ar, Kr 相应直线的斜率之比为 1:2.6:6.0。在文献[5]中给出了 Ne, Ar, Kr 等惰性气体对  $H_2$  的  $Q_{01}(1)$  振转跃迁的碰撞加宽系数之比为 1:1.6:2.1, 两者定性一致。

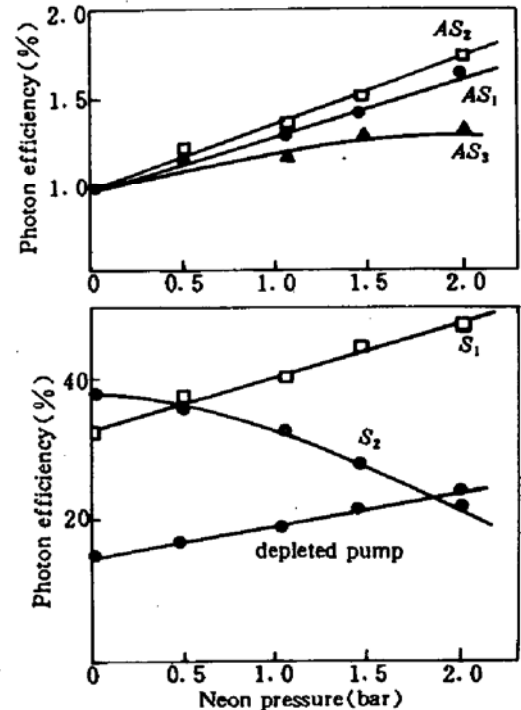


Fig. 1 Conversion efficiency to different Stokes and anti-Stokes orders as a function of the Ne buffer gas pressure added to an initial  $H_2$  fill pressure of 3 bar at the pump laser energy of 50 mJ

## 4 结 语

综上所述,本文研究了在  $H_2$ -惰性气体体系中反斯托克斯拉曼转换随缓冲气体的种类和密度的变化。通过惰性气体分子对氢拉曼能级的碰撞加宽以控制拉曼增益,抑制了一阶到二阶斯托克斯波  $S_1 - S_2$  的拉曼转换,在一定程度上提高了低阶反斯托克斯拉曼转换的效率。但是随着惰性气体密度的提高,将导致  $H_2$ -惰性气体混合物色散率的增加,使位相失配的问题趋于严重,因此此种方法对于在高阶反斯托克斯拉曼转换中的应用,将受到较大的限制。

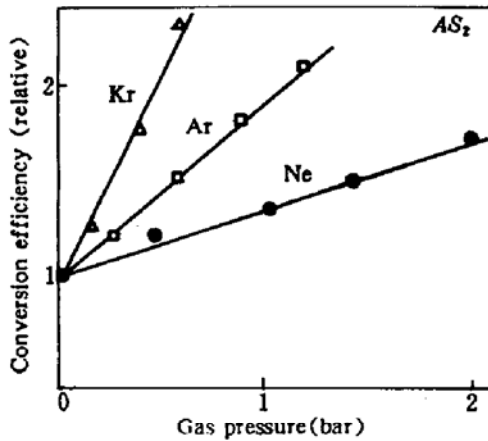


Fig. 2 Effects of different buffer gases on the second-order anti-Stokes generation at an initial  $H_2$  pressure of 3 bar

## 参 考 文 献

- 1 D. J. Brink, D. Proch. Efficient tunable ultraviolet source based on stimulated Raman scattering of an excimer-pumped dye laser. *Opt. Lett.*, 1982, 7(10):494~496
- 2 H. Döbel, M. Horl, M. Rowekamp. Tuning range of KrF and ArF excimer laser amplifiers and of associated vacuum ultraviolet anti-Stokes Raman lines. *Appl. Phys. B*, 1987, 42(1):67~72
- 3 霍芸生, T. Yagi, K. Shimizu. 反斯托克斯拉曼转换增益系数的最佳化. *中国激光*, 1994, A21(8):649~652
- 4 A. Luches, V. Nassisi, M. Perrone. Stimulated Raman scattering in  $H_2$ -Ar mixtures. *Opt. Lett.*, 1987, 12(1):33~35
- 5 D. Robert, J. Sala, G. Levi *et al.*. Temperature dependence of the vibrational phase relaxation in gases; application to  $H_2$ -rare gas mixtures. *Chem. Phys.*, 1985, 99(2):303

## Anti-Stokes Raman Conversion of KrF Laser Radiation in Hydrogen-rare Gas Mixture

Huo Yunsheng Ding Aizhen

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

**Abstract** The Raman gain coefficient in hydrogen-rare gas mixture is controlled through the collisional broadening of the hydrogen Raman transition by rare-gas molecules. This results in the suppression of the Raman conversion from the first-order Stokes to the second-order Stokes and the increase in the conversion efficiency for the lower anti-Stokes orders.

**Key words** anti-Stokes Raman conversion, KrF excimer laser, buffer gas