

# 氟化氮准分子激光在氢气中受激拉曼 散射阈值的实验研究\*

宁东 楼祺洪 向世清 董景星 魏运荣

(中国科学院上海光机所 上海 201800)

**提要** 对纳秒级准分子激光泵浦的拉曼种子源的阈值特性进行了实验研究,讨论了受激拉曼散射过程的阈值条件及定义.实验测量了脉宽为25 ns的氟化氮准分子激光在不同聚焦参数和不同氢气气压下的受激拉曼散射阈值.最后,分析了聚焦参数及四波混频过程对泵浦阈值的影响.

**关键词** 准分子激光,受激拉曼散射,阈值

## 1 引言

准分子激光在气体( $H_2$ ,  $CH_4$ )中的受激拉曼散射过程已经得到了深入的理论和实验研究<sup>[1,2]</sup>.近年来,由准分子激光泵浦的气体拉曼散射-放大系统,由于其简单性和高转换效率,并有可能通过拉曼整形、拉曼组束、角多路倍增等技术改善及控制输出光束质量和脉冲波形,已成为固体高功率激光系统的有力竞争者,在受控核聚变、化学同位素分离等领域中获得了广泛的应用.

本文将侧重于研究这一系统中拉曼种子源的阈值特性.首先从理论上分析了受激拉曼过程的阈值条件及定义.实验测量了脉宽为25 ns的氟化氮准分子激光在氢气中受激拉曼散射阈值随聚焦参数及氢气气压的变化,实验结果与理论分析基本一致.文章最后分析了聚焦参数及四波混频过程对泵浦阈值的影响.

## 2 理论

描述起源于量子噪声的受激拉曼散射过程,通常应采用全量子理论<sup>[3,4]</sup>.但M. G. Raymer等在文献[3]中指出:如果定义合适的自发散射源,半经典拉曼放大理论仍然适用.考虑阈值附近的散射过程,可假设泵浦光保持恒定.在稳态条件下,即泵浦脉冲宽度 $t_p$ 远大于介质的拉曼弛豫时间 $T_2 = 1/\pi\Delta\nu_R$ ,  $\Delta\nu_R$ 为拉曼线宽,斯托克斯光强 $I_s$ 的增长满足

$$I_s(L) = I_{s0} e^{\gamma L} \quad (1)$$

式中 $I_{s0}$ 为自发散射斯托克斯光强, $\gamma$ 为拉曼增益因子, $L$ 为拉曼介质长度.增益因子和自发散射斯托克斯光强可按下式计算<sup>[2]</sup>

\* 863 高技术资助项目.

收稿日期: 1996-09-02; 收到修改稿日期: 1996-12-24

$$\gamma = \frac{\lambda_s^2}{h\nu_s} \cdot \frac{2}{\pi\Delta\nu_s} \cdot N \cdot f_B \cdot \frac{\partial\sigma}{\partial\Omega} \quad (2)$$

$$I_{s0} = \frac{h\nu_s}{\lambda_s^2} \cdot \Delta\nu_s \cdot \Delta\Omega \quad (3)$$

式中 $\lambda_s, \nu_s$ 分别为斯托克斯光波长和频率, $N$ 为分子数密度, $f_B$ 为玻耳兹曼因子, $\partial\sigma/\partial\Omega$ 为自发拉曼散射截面, $\Delta\Omega$ 为散射区域的空间立体角。

受激拉曼散射的阈值通常定义为斯托克斯光强转换效率 $\eta = I_s/I_p \approx 1\%$ ,并根据典型情况下的自发散射斯托克斯光强 $I_{s0}$ 和泵浦峰值光强 $I_{pm}$ 推算出阈值拉曼增益 $G_{th} = \gamma I_p L \approx 25^{[2,5]}$ 。我们认为 $\eta \approx 1\%$ 的阈值定义有很大的随意性,而且很难运用于泵浦阈值的实验测量。因此,将 $G = 25$ 作为基本的阈值定义,根据具体实验条件下的 $I_{s0}$ 和式(1)确定拉曼增益达到阈值时的斯托克斯光强,以此作为阈值测量的依据。

在不满足稳态条件 $t_p \gg T_2$ 时,必须根据瞬态拉曼散射理论对阈值条件进行修正<sup>[1,5]</sup>。假设泵浦脉冲具有高斯波形,文献[1]给出了适用于一般情况的经验公式

$$\gamma I_p L = 25 + 131.5 T_2 / t_p \quad (4)$$

式(1)中实际上已假设泵浦光为平面波。在泵浦光和斯托克斯光均为基模高斯光束的情况下,由于波长不同,两光束的束腰不可能相互重合,实际增益应当乘上一个“重叠因子(overlap parameter)”, $\mu = \lambda_p / (\lambda_p + \lambda_s)^{[6]}$ 。若泵浦光聚焦在拉曼池中心,则拉曼增益为

$$G = \mu \cdot \gamma \cdot \int I_{pm} dl = \mu \cdot \gamma \cdot \frac{4P_p}{\lambda_p} \cdot \tan^{-1}(L/b) \quad (5)$$

式中 $P_p$ 为泵浦光功率, $b$ 为高斯光束的共焦参数。

泵浦光脉冲为高斯波形时,脉冲能量 $E_p = 1.06 P_p \cdot t_p$ ,由式(4),(5)可以推出阈值泵浦能量的表达式

$$E_{th} = \frac{(6.6 t_p + 34.8 T_2)}{\mu \cdot \gamma \cdot \tan^{-1}(L/b)} \quad (6)$$

式中共焦参数 $b \approx 2\lambda_p (F^2/\pi r^2)$ , $r$ 为入射到透镜表面上的高斯光束光斑半径, $F$ 为透镜焦距。如果满足 $L \gg b$ ,式(6)可简化为

$$E_{th} = (4.2 t_p + 22.3 T_2) \lambda_p / \mu \gamma \quad (7)$$

即阈值泵浦能量与聚焦参数无关。

### 3 实验

实验中使用一台LPX-150型KrF准分子激光器作为泵浦光源,激光波长为248 nm,线宽为0.5 nm,输出脉宽为25 ns(FWHM),单脉冲能量为140 mJ,最大重复率为100 Hz,输出光束口径为1×2 (cm),远场发散角约为0.2 mrad。该激光器由振荡源、放大级两部分组成,改变放大级电压可以方便地调节输出能量(12~140 mJ)。由于采用了计算机反馈电压控制,输出能量非常稳定,脉冲能量起伏小于5%。

实验安排如图1,激光器输出光束经过一0.8×0.8 (cm)大小的矩形限束光阑后,聚焦在拉曼池中心,透镜焦距 $F = 100, 60, 30$  cm(对应共焦参数分别为0.98, 0.36, 0.09 cm)。拉曼池长度 $L = 70$  cm,对于三种焦距均满足 $L \gg b$ ,氢气气压 $P = 1 \sim 9$  atm。拉曼池输出光束经透镜准直后,由一组棱镜分光得到分离的泵浦光和各阶斯托克斯光,一台PT-1型激光功率能量计

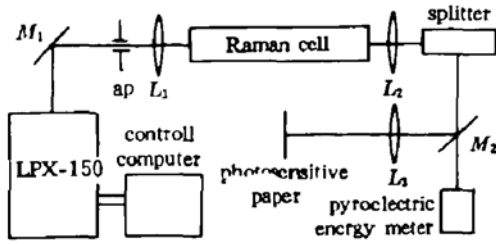


图 1 实验设置

Fig. 1 Schematic diagram of the experimental setup

测量输出的斯托克斯光能量, 泵浦光能量由控制计算机提供。

目前, 对于实验中如何确定阈值泵浦能量, 意见并不统一。文献[1]将能量转换效率  $E_s/E_p = 10\%$  作为阈值条件, 而文献[7]认为此时的泵浦能量约两倍于阈值。但在理论计算时, 两者又都将  $G = 25$  作为阈值增益。因此, 如第二节中所述, 我们

们把  $G = 25$  作为基本阈值定义。由式(3)可计算出不同气压下的自发散射斯托克斯光强, 将斯托克斯光强  $I_s = I_{s0}e^{25}$  作为达到阈值的条件。

### 4 实验结果与分析

图 2 为透镜焦距  $F = 100, 60, 30$  cm 时阈值泵浦能量随气压的变化曲线。图中虚线为根据式(7)计算的理论曲线。对于不同的透镜焦距, 实验值随气压的变化均呈现相似的特征。我们测量的 XeCl 激光在氢气和甲烷中的受激拉曼散射阈值随气压的变化也与此类似。在低气压方向, 测量值与理论值的偏差较大, 随着气压升高, 这种偏差逐步减小, 气压进一步增加, 测量阈值又略有上升。这在焦距为 100 cm 时表现得最为明显。在较宽的气压范围内(2~6 atm), 焦距 100 cm 和 60 cm 时的阈值能量基本相同, 这与前面的理论是一致的。但在低气压段,  $F = 30$  cm 时的阈值能量要比焦距为 100 和 60 cm 时大得多。气压低于 3 atm, 焦距为 30 cm 时观察不到斯托克斯光的产生。

实验值与理论值的偏差可以从以下几个方面分析:

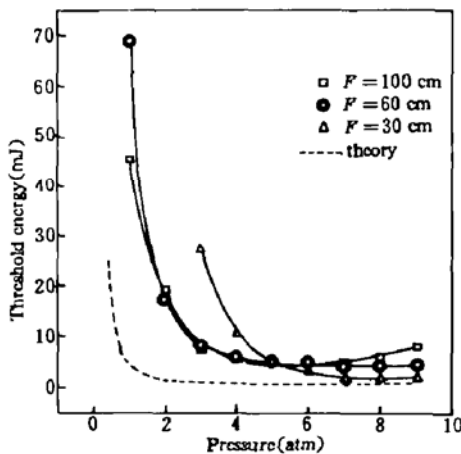


图 2 实验测量的氢气中受激拉曼散射阈值在不同焦距下随气压的变化。透镜焦距  $F = 100, 60, 30$  cm。理论曲线按式(7)计算

Fig. 2 The measured pump energy threshold for stimulated Raman scattering in  $H_2$  versus pressure.  $F = 100, 60,$  and 30 cm. The theoretical curve is calculated according to formula (7)

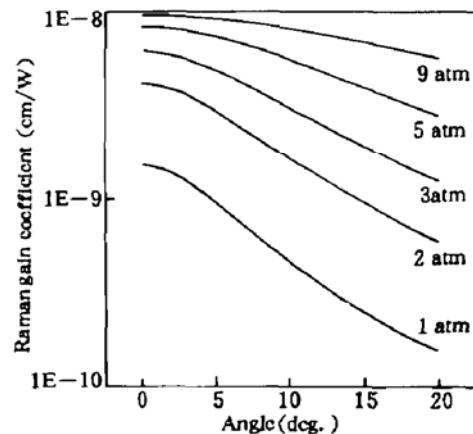


图 3 在不同气压下拉曼增益因子随泵浦光和斯托克斯光波矢夹角的变化曲线

Fig. 3 The Raman gain coefficient in  $H_2$  pumped at 248 nm versus the angle between the wave vectors of the pump and Stokes beams at different pressures

在推导式(7)时,已假设泵浦光为基模高斯光束。而实验中准分子激光光束的远场发散角约为 0.2 mrad,接近 100 倍衍射极限。实际光束的束腰面积远大于基模高斯光束,泵浦功率密度下降,使得实验值高于理论值。同时,由于实验中没有采用消球差透镜,质量较差的泵浦光束在聚焦过程中发生畸变,也会使测量阈值上升。用光敏纸观察泵浦光束截面在聚焦区域内的变化, $F=30$  cm 时光束发生明显畸变,远场发散角增至 0.5 mrad,在焦点周围有弥散的光强分布。 $F=100$  和 60 cm 时的光束畸变相对要小得多,远场发散角基本不变。由于拉曼散射过程中衍射、色散等因素造成的损耗,使得产生有效的斯托克斯光,不仅要满足阈值增益条件[式(4)],泵浦光强还必须超过阈值光强  $I_{th} \propto 1/\gamma^{[8,9]}$ 。在高气压段的变化较为平缓,随气压减小  $\gamma$  迅速下降。因此阈值光强  $I_{th}$  在低气压段随气压下降迅速增大。畸变造成的弥散部分的泵浦能量由于光强低于阈值而不能产生有效的拉曼增益,使得  $F=30$  cm 时测量的阈值能量在低气压段迅速上升,偏离理论值。另外,在推导式(5)时,泵浦光强  $I_{pm}$  为高斯光束的峰值光强。由于拉曼增益因子不仅随气压变化,也是泵浦光与斯托克斯光波矢夹角的函数<sup>[2]</sup>,如图 3,即泵浦光束的非轴向部分也对总增益有贡献。这种贡献随气压降低和焦距缩短而减小,也会导致测量值在低气压时的增大,使图 2 中焦距为 60 cm 时的阈值能量比 100 cm 时高。

在受激拉曼散射实验中,通常都会产生高阶尤其二阶斯托克斯光。二阶斯托克斯光的产生有两种途径。一是一阶斯托克斯光达到一定强度后作为泵浦光生成二阶斯托克斯光,很明显这一过程不会影响一阶斯托克斯光的泵浦阈值,仅仅是降低其转换效率。另一途径是泵浦光与一阶斯托克斯光的四波混频过程,如图 4。这一过程需要满足相位匹配条件  $\vec{k}_1 + \vec{k}_2 = 2\vec{k}_s$ ,但不存在能量阈值。因此只要能满足相位匹配条件,在一阶斯托克斯光的阈值附近也存在四波混频过程,消耗一阶斯托克斯光能量,使测量阈值上升。实验中发现,在高气压段,二阶斯托克斯光在一阶阈值附近的产率随焦距增大而增加,即长焦距有利于产生四波混频效应。这是图 2 中阈值能量在高气压段上升的直接原因。在一些受激拉曼散射实验中,通过增大焦距、提高气压(30~160 atm)来抑制四波混频效应,提高一阶斯托克斯光转换效率<sup>[10]</sup>。在我们实验中所达到的最高气压(9 atm,对应四波混频角  $\theta_{2s} = \sqrt{(n_1 + n_2 - 2n_s)/n_s} \sim 2.5$  mrad<sup>[2]</sup>)不足以抑制四波混频效应,采用长焦距反而使由四波混频角决定的光锥面上的泵浦能量密度增大,四波混频效应增强,如图 4。

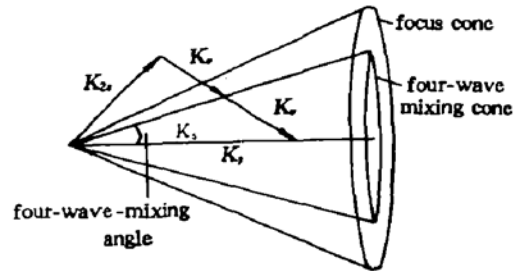


图 4 四波混频中的波矢关系

Fig. 4 The wave-vector relations for four-wave mixing in stimulated Raman scattering

### 参 考 文 献

- 1 N. J. Everall, J. P. Partanen, J. R. Barr et al. Threshold measurements of stimulated Raman scattering in gases using picosecond KrF laser pulses. *Opt. Commun.*, 1987, 64 : 393
- 2 J. P. Partanen, M. J. Shaw. High-power forward Raman amplifiers employing low-pressure gases in light guides. I. Theory and applications. *J. Opt. Soc. Am. B*, 1986, 3 : 1374
- 3 M. G. Raymer, J. Mostowski. Stimulated Raman scattering. Unified treatment of spontaneous initiation and spatial. *Phys. Rev.*, 1981, A24 : 1980
- 4 M. Trippenbach, K. Rzaewski, M. G. Raymer. Stimulated Raman scattering of colored chaotic light. *J. Opt. Soc. Am. B*, 1984, 1 : 671
- 5 A. Penzkofer, A. Laubereau, W. Kaiser. High intensity Raman interactions. *Prog. Quant. Electr.*, 1979, 6 :

55

- 6 B. N. Perry, P. Rabinowitz, M. Newstein. Wave propagation in media with focused gain. *Phys. Rev.*, 1983, A27 : 1989
- 7 D. C. Hanna, D. J. Pointer, D. J. Pratt. Stimulated Raman scattering of picosecond light pulses in hydrogen, deuterium, and methane. *IEEE J. Quant. Electr.*, 1986, QE-22 : 332
- 8 S. A. Akhmanov, Yu. E. D'yakov, L. I. Pavlov. Statistical phenomena in Raman scattering stimulated by a broad-band pump. *Sov. Phys. JETP*, 1974, 39 : 249
- 9 D. Cotter, D. C. Hanna, R. Wyatt. Infrared stimulated Raman generation; Effects of gain focussing on threshold and tuning behaviour. *Appl. Phys.*, 1975, 8 : 333
- 10 T. T. Lay, S. Wada, H. Tashiro *et al.*. Relation of pump-beam quality and conversion efficiency in the Raman downward conversion. *Appl. Phys.*, 1996, B69 : 59

## Experimental Research of the Threshold of Stimulated Raman Scattering in H<sub>2</sub> Pumped by KrF Excimer Laser

Ning Dong Lou Qihong Xiang Shiqing Dong Jingxing Wei Yunrong

(Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800)

**Abstract** The threshold characteristics of a Raman generator pumped by ns pulses of an excimer laser are investigated experimentally. The definition of the threshold for stimulated Raman scattering is discussed in detail. The threshold for stimulated Raman scattering in hydrogen pumped by the KrF excimer laser with a 25 ns pulse width is measured at different focal lengths and for different pressures of H<sub>2</sub>. At the end, the effects of focal length and four-waves-mixing on the threshold are analyzed.

**Key words** excimer laser, stimulated Raman scattering, threshold