

文章编号: 0258-7025(2003)09-0819-04

# 固体三倍频激光在高压 H<sub>2</sub> 中受激拉曼散射的实验研究

朱晓峥<sup>1,2</sup>, 楼祺洪<sup>1</sup>, 叶震寰<sup>1</sup>, 董景星<sup>1</sup>, 魏运荣<sup>1</sup>

(<sup>1</sup> 中国科学院上海光学精密机械研究所, 上海 201800; <sup>2</sup> 中国科学院研究生院, 北京 100039)

**摘要** 利用 Nd:YAG 激光器的三倍频输出(355 nm)在 H<sub>2</sub> 中的受激拉曼散射(SRS)获得波长在 204~867 nm 范围内的激光输出。当抽运能量为 70 mJ 时观察到四阶 Stokes 光和五阶 Anti-Stokes 光,其中第一阶 Stokes 光(416 nm)输出能量为 28.7 mJ,第二阶 Stokes 光(503 nm)输出能量为 16 mJ,一阶 Anti-Stokes 光(309 nm)输出能量为 3 mJ。研究了 H<sub>2</sub> 压力和各阶 Stokes 光能量的关系,同时观察到环形光斑和脉宽压缩现象。

**关键词** 非线性光学;受激拉曼散射;固体激光;四波混频

**中图分类号** O 437.3      **文献标识码** A

## Experimental Investigation of Stimulated Raman Scattering in H<sub>2</sub> Pumped by the Third Harmonic Solid-state Laser at 355 nm

ZHU Xiao-zheng<sup>1,2</sup>, LOU Qi-hong<sup>1</sup>, YE Zhen-huan<sup>1</sup>, DONG Jing-xing<sup>1</sup>, WEI Yun-rong<sup>1</sup>

(<sup>1</sup> Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, The Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China)  
(<sup>2</sup> Graduate School of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100039, China)

**Abstract** The Stimulated Raman Scattering (SRS) in H<sub>2</sub> pumped by the third harmonic of Nd:YAG laser (355 nm) was investigated. The wavelength of pump laser has been shifted into 204~867 nm wavelength region. When the pump laser was operated at laser energy of 70 mJ, four orders of Stokes and five orders of anti-Stokes have been observed in this experiment. The corresponding output energy of the first order Stokes (416 nm), the second order Stokes (503 nm) and the first order anti-Stokes (309 nm) was 28.7 mJ, 16 mJ and 3 mJ, respectively. The relationships between the pressure of H<sub>2</sub> and energy of each Stokes were investigated. Moreover, the circle beam spot and phenomena of pulse-width compressed have been observed.

**Key words** nonlinear optics; stimulated Raman scattering (SRS); solid-state laser; four-wave mixing (FWM)

## 1 引言

受激拉曼散射(SRS)作为一种产生新波长的工具,具有功率高、转换效率高、波长选择范围广等优点。波长范围覆盖真空紫外(VUV)到远红外(FIR)<sup>[1]</sup>,使用范围相当广阔。在海底通讯、大气监测、激光雷达、环境检控、光刻、激光扫描和清洁等领域都有广泛的应用,而且也可以用于数据存储以及各种气体的探测。

在传统的研究中一般用准分子激光器作为

SRS的抽运源,而对固体激光的SRS研究比较少。本实验主要研究了固体三倍频激光在不同压力条件下气体SRS的转换效率、波形等光学参数,并进行相应的理论解释,得出了和理论相一致的结果,为受激拉曼光的使用提供一个有用的参考。影响受激拉曼散射的因素主要有:拉曼气体的压力和类型、聚焦长度、抽运功率、光束质量等。本文还就气体压力对转换效率的影响以及对所观察到的环形光斑和Stokes波形做了一定的讨论。

收稿日期:2002-05-10;收到修改稿日期:2002-06-20

基金项目:国家自然科学基金(编号:19984002)和国家高技术ICF资助项目。

作者简介:朱晓峥(1976—),男,主要从事固体激光非线性频率变换研究。E-mail:zhuxiaozheng@tsinghua.org.cn

## 2 实验装置

采用如图 1 所示的实验装置进行 SRS 实验研究。用 SL454G 型 Nd:YAG 激光器的三倍频输出作抽运源。重复频率为 30 Hz, 355 nm 激光的输出能量 70 mJ, 脉宽 8 ns。

Nd:YAG 激光器三倍频 355 nm 的输出通过分束镜分为两部分。一部分用作能量监测, 另一部分作为拉曼的抽运源通过透镜 Lens-1 聚焦后进入拉

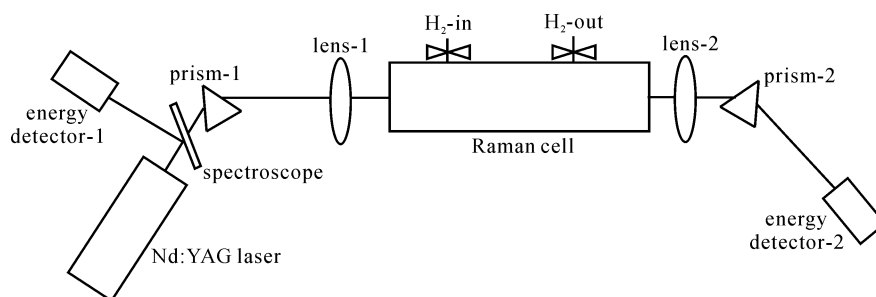


图 1 受激拉曼散射实验装置

Fig. 1 Experimental setup of the SRS experiment

## 3 结果及讨论

在实验中观察到从四阶 Stokes 光到五阶 Anti-Stokes 光, 在 867 nm, 637 nm, 503 nm, 416 nm, 355 nm (抽运), 309 nm, 274 nm, 246 nm, 223 nm, 204 nm 波长处都有激光输出, 分别用  $S_4, S_3, S_2, S_1, P, AS_1, AS_2, AS_3, AS_4, AS_5$  表示。 $S_3, S_2, S_1, P, AS_1, AS_2, AS_3, AS_4, AS_5$  可以直接用肉眼观察到。 $S_4$  为不可见光, 但用功率计可以测知其存在。一阶 Stokes 光主要来源于 SRS, 而更高阶的 Stokes 光则是 SRS 和四波混频(FWM)共同作用的结果。例如二阶 Stokes 光: 一部分来源于一阶 Stokes 光的 SRS, 另一部分来源于抽运光、一阶 Stokes 光和二阶 Stokes 光的四波混频。更高阶的 Stokes 光情况更为复杂。

首先对不同压力情况下剩余抽运能量进行了测试。图 2 表示随着气体压力的增大, 剩余抽运能量呈二次指数衰减。衰减的能量主要分为两部分, 一部分被气体吸收, 另一部分转换为各阶 Stokes 光。结合图 3 可以得出, 在低气压部分大部分抽运能量转换为各阶 Stokes 光。而在高压部分, 则有很大一部分能量被气体吸收。图 2 中的输出能量为剩余抽运能量和各阶 Stokes 光能量的总和, 它随压力的增加而减少证明了压力越大气体吸收的能量越多。

图 3 表示 Stokes 光  $S_1, S_2, S_3, S_4$  的转换效率随

曼池。拉曼池为长 85 cm 的不锈钢管, 入射窗和出射窗是没有镀膜石英玻璃, 焦点位于拉曼池中心位置。拉曼池的输出通过透镜 Lens-2 聚焦以后由棱镜组 Prism-2 将不同阶次的 Stokes 光分开。为了获得平行光输出, Lens-1 和 Lens-2 为共焦系统。棱镜 Prism-1 的作用主要是避免后向 Stokes 光束进入激光器, 而且必要的时候可以对后向 Stokes 光进行研究。

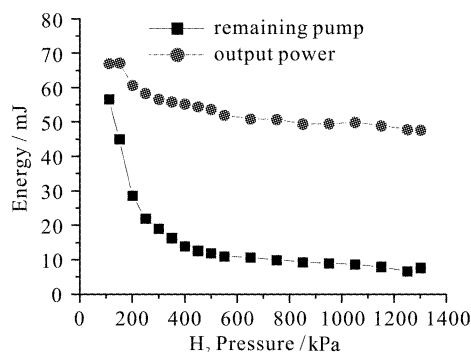


图 2 剩余抽运能量及输出总能量与气体压力的关系  
Fig. 2 Relationship between the energy of remaining pump and the pressure of  $H_2$ . Relationship between the output power and pressure

气体压力变化的情况(抽运能量为 70 mJ)。氢气压力为 300 kPa 时,  $S_1$  的脉冲能量最大值为 28.7 mJ, 光子转换效率高达 48%。随着压力的增加  $S_1$  的能量降低,  $S_2, S_3, S_4$  依次出现能量峰值,  $S_2$  的最高转换效率达 32%。 $S_2$  在低压阶段主要由四波混频产生, 所以上升趋势缓慢。随着  $S_1$  能量的增加( $S_1$  能量随气压的增加而增加), 达到  $S_2$  的 SRS 阈值(大约在 300 kPa),  $S_2$  主要由  $S_1$  光的 SRS 产生, 这时能量明显上升直到峰值。更高阶的 Stokes 光分析比较复杂, 阶次越高存在四波混频的作用过程越多。例如: 二阶 Stokes 光只存在两个过程(SRS 和一个

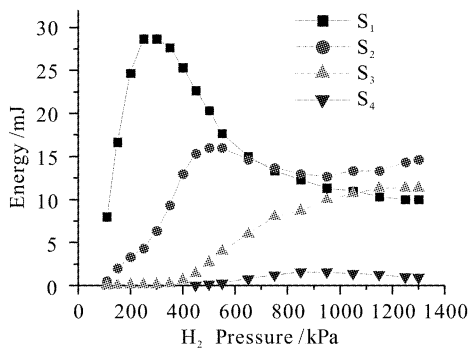


图 3 Stokes 光能量随 H<sub>2</sub> 压力的变化  
(抽运能量 70 mJ)

Fig. 3 Energy versus pressure of H<sub>2</sub>  
(pump energy=70 mJ)

四波混频过程);而三阶 Stokes 光则存在一个 SRS 和两个四波混频过程共同作用;四阶的 Stokes 光存在一个 SRS 和五个四波混频过程。 $N$  阶的 Stokes 光存在的作用数目为  $(n-1)(n-2)/2$ <sup>[2]</sup>。所以更高阶的 Stokes 光在这里不再做分析。

当 S<sub>1</sub> 的光子转换效率达到 48% 时, S<sub>2</sub> 的光子转换效率大约为 14%, 由于 S<sub>2</sub> 的产生将消耗一定的 S<sub>1</sub> 光, 因此如果抑制 S<sub>2</sub> 光的产生可以提高 S<sub>1</sub> 的转换效率。抑制二阶 Stokes 光的方法主要有两种<sup>[3]</sup>: 一是采用二阶 Stokes 光阈值高的气体, 二是在气体介质中加入缓冲气体 (He, Ar 等) 改变气体的折射率, 破坏四波混频的相位匹配条件, 从而抑制二阶 Stokes 光和更高阶的 Stokes 光。当然也从其他方面抑制二阶 Stokes 光的产生。实验表明, 在 320 kPa 的纯氢气拉曼实验中 S<sub>1</sub> 的光子转换效率为 39.4%, 而在 320 kPa 的氢气中加入 100 kPa 的 He, 结果转换效率变为 41.6%。所以在拉曼介质中加入惰性气体可以提高一阶 Stokes 光的转换效率。

实验中还观察了 Anti-Stokes 光。Anti-Stokes 光通过抽运光和 Stokes 光四波混频产生。一旦存在 Anti-Stokes 光, 就可以通过 SRS 转换产生更低阶 Anti-Stokes 光 (如 AS<sub>2</sub>, AS<sub>3</sub>, … 等)。实验中 AS<sub>1</sub> 的能量转换效率可达 4%。图 4 表示各阶 Anti-Stokes 光能量随氢气压力的变化。在低气压阶段, AS<sub>1</sub> 随 S<sub>1</sub> 能量的增加而增加。因为在这个阶段 S<sub>2</sub> 还没有达到阈值, S<sub>1</sub> 有很大一部分能量提供给 AS<sub>1</sub> 作为四波混频的能源, 所以 AS<sub>1</sub> 的转换效率高。随着气压的增高 S<sub>1</sub> 的转换效率增加直到达到 S<sub>2</sub> 的阈值, 开始产生 S<sub>2</sub> 的 SRS。这时存在 AS<sub>1</sub> 和 S<sub>2</sub> 之间的竞争, 所以 AS<sub>1</sub> 的能量在 300~500 kPa

时出现一个凹陷。更低阶的 Anti-Stokes 光的形成机制和 AS<sub>1</sub> 的四波混频有关, 所以在相应位置也出现能量凹陷。

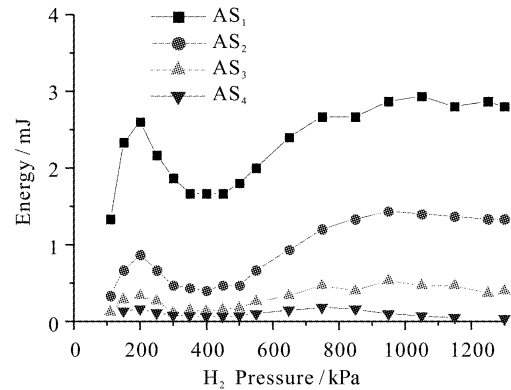


图 4 各阶 Anti-Stokes 光能量随 H<sub>2</sub> 压力的变化  
Fig. 4 Energy of Anti-Stokes versus pressure of the H<sub>2</sub>

为了能清楚地了解 H<sub>2</sub> 的 SRS 过程, 观察了各阶 Stokes 光的脉冲波形, 如图 5 所示。为了分开剩余抽运光和各阶 Stokes 光, Stokes 光做了相应的时间延迟。由于在测量时用了不同的衰减片, 所以纵坐标的大小没有可比性。用 Lecroy 示波器进行测量, 响应频率 10 GHz, 因此观察到的波形毛刺比较多, 但是也观察到了一些细节。在同一个脉冲中, 和一阶 Stokes 光峰值相对应的剩余抽运光的位置必然出现一个低谷, 这说明抽运能量转换为 Stokes 光。各阶 Stokes 光的上升沿都比较陡, 这和 Stokes 光的阈值有关。当抽运能量上升超过 Stokes 光的阈值后, Stokes 光的能量迅速上升。同时由于抽运光的能量转换到 Stokes 光, 剩余抽运光能减少, 使得 Stokes 光的能量也减少, 而 Stokes 光能量的减少使得抽运光能量上升, 抽运能量的上升又使得 Stokes 光能量上升。这样循环直到抽运能量小于 Stokes 光的阈值。由于上述原因使得 Stokes 光的脉宽得到压缩<sup>[4]</sup>。从图 5 可以明显地看出各阶 Stokes 光的脉冲宽度都在一定程度上得到压缩。正一阶和正二阶的脉宽压缩比较明显, Anti-Stokes 光的压缩比相对要小一些。这是因为正 Stokes 光主要来源于 SRS, 而 Anti-Stokes 光主要来源于四波混频<sup>[2]</sup>。对比各阶 Stokes 光开始产生的时刻, 可以明显看出: AS<sub>1</sub> 和 S<sub>1</sub> 几乎是同时产生的, 这说明四波混频是没有阈值的; 而 S<sub>2</sub> 的产生时刻明显滞后于 S<sub>1</sub>, 这也证明了前面提到的只有当 S<sub>1</sub> 的能量超过了 S<sub>2</sub> 的阈值时, S<sub>2</sub> 才由 SRS 产生。

此外在实验中还观察到了 Stokes 光的环行光

斑。在气压比较低的部分(200~500 kPa)可以明显地看到  $S_2, S_3$  的光斑呈环行结构。在低压条件下,  $S_2, S_3$  主要由四波混频过程产生。只有满足四波混频的波矢匹配条件,才有最大的转换效率。因此在特定方向上,能满足最佳相位匹配条件,出现了环行光斑结构。随着气压的增高,  $S_1$  光的能量超过各阶 Stokes 光的阈值,这时光斑不再呈现环行结构,因为环行结构淹没在 SRS 光中。而 Anti-Stokes 光不

一样,在整个过程中光斑都是环行的。图 6 为  $H_2$  压力为 900 kPa 时 Anti-Stokes 光的光斑,可以明显地看到反二阶和反三阶的环行结构。图 7 为二阶 Anti-Stokes 光斑的纵向能量分布。虽然图像经过了扫描、数值化等处理,但是能明显地表明环行光斑的存在。这也证明了 Anti-Stokes 光主要是四波混频产生的。

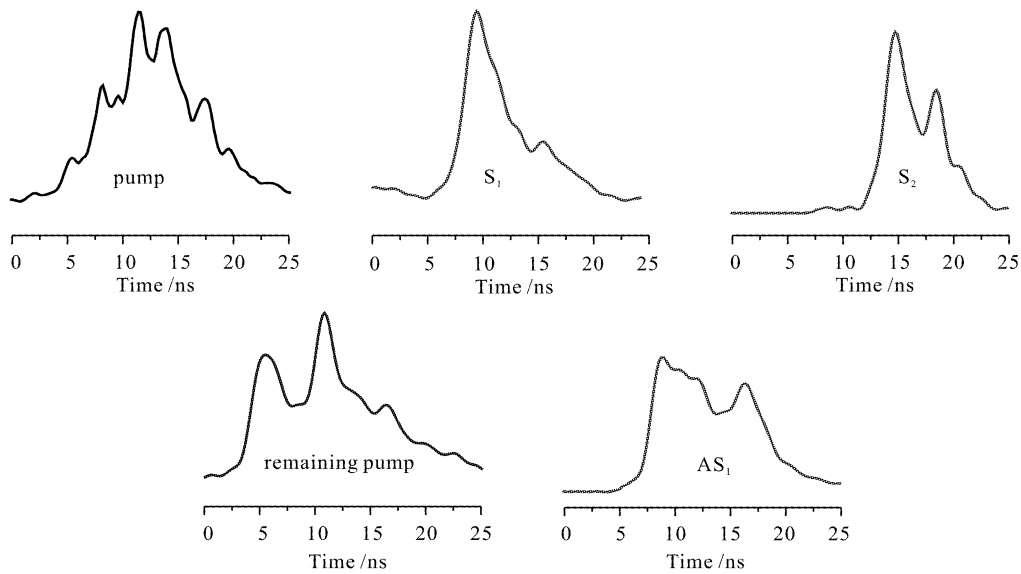


图 5 抽运光和各阶 Stokes 光波形的时间分布

Fig. 5 Pulse waveform of Stokes beams

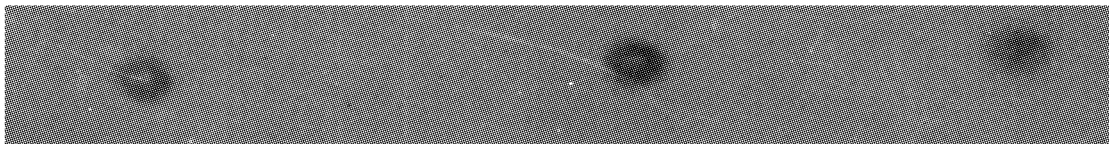


图 6 Anti-Stokes 光斑形状,从左向右依次为  $AS_3, AS_2, AS_1$

Fig. 6 Spot form of Anti-Stokes beams,  $AS_3, AS_2, AS_1$ , respectively

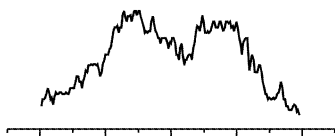


图 7 二阶 Anti-Stokes 光斑的纵向能量分布

Fig. 7 Profile of the 2nd order anti-Stokes beam

### 参 考 文 献

- 1 T. Loree R. Sze, D. Barker, P. Scott *et al.*. New lines in the UV SRS of excimer laser wavelengths [J]. *IEEE J. Quantum Electron.*, 1979, **QE-15**(5):337~342
- 2 Laurent de Schouepnikoff, Valentin Mitev, Valentin Simeonov *et al.*. Experimental investigation of high-power single-pass Raman shifters in the ultraviolet with Nd:YAG and KrF lasers [J]. *Appl. Opt.*, 1997, **36**(21):5026~5043
- 3 Laurent de Schouepnikoff, Valentin Mitev, Valentin Simenov *et al.*. High-gain single-pass stimulated Raman scattering and four-wave mixing in a focused beam geometry: a numerical study [J]. *Pure Appl. Opt.*, 1997, **6**:277~302
- 4 Lou Qihong, Xu Jianqiu, Dong Jingxing *et al.*. Superbroadband Raman compression in hydrogen [J]. *Chinese J. Lasers* (中国激光), 2000, **A27**(1):64~68 (in Chinese)