

# 金属蒸气受激喇曼散射的原子 基态抽空效应\*

霍芸生 楼祺洪 丁泽安 王润文  
(中国科学院上海光学精密机械研究所)

## 提 要

将受激 Raman 散射原子基态及终态粒子数变化的速率方程与聚焦的泵浦光束及喇曼光束功率变化的微分方程组联立并进行数值求解;研究了金属蒸气受激 Raman 散射过程中基态粒子数的抽空现象及其对 Raman 能量转换过程的影响。

关键词: 金属蒸气受激喇曼散射。

## 一、引 言

准分子激光在金属原子蒸气中的受激 Raman 散射扩展了在近紫外及蓝绿波段可用激光波长的范围<sup>[1~2]</sup>, 并有许多重要的应用前景。XeCl 准分子激光束在铅蒸气中的 Raman 转换所产生波长在 459 nm 附近的 Raman 光处于海水透射窗口处, 有可能在水下通讯中得到应用。

由于高温 Raman 池技术的限制, 金属蒸气 Raman 池加热温度通常不超过 1300°C, 相应的金属蒸气压一般为  $\sim 10$  Torr 量级, 比通常的高压  $H_2$  Raman 散射实验中的氢气压力 ( $\sim 20$  大气压) 约低 2~3 个数量级。又由于在金属原子蒸气中近共振 Raman 散射的终态常为亚稳态, 能级寿命较长。当与光束作用体积内相当一部分原子被激励到亚稳态后, 受激 Raman 散射的增益系数将有明显的下降。这种原子基态抽空效应对 Raman 转换过程的影响已在一些实验研究中观察到<sup>[3~4]</sup>。

本文将 Raman 散射中原子基态及终态粒子数变化的速率方程与聚焦泵浦光束及 Raman 光束功率变化的微分方程组联立, 对 XeCl 准分子激光束在铅蒸气中的受激 Raman 散射过程进行了数值求解。研究了在不同泵浦条件下原子介质的抽空, 以及这种粒子数的饱和对于激光波形及能量转移特性的影响, 并与实验结果进行了比较。

## 二、基本方程及数值求解

假设在光束截面内, 激光强度是均匀分布的, 则入射的聚焦泵浦光束与其所产生的前向 Raman 散射光束间的能量交换满足下列方程<sup>[5~6]</sup>

收稿日期: 1986年9月4日

\* 本工作受中国科学院科学基金资助。

$$\frac{\partial P_p}{\partial z} + \frac{1}{C} \frac{\partial P_p}{\partial t} = -\frac{\omega_p}{\omega_s} \frac{g}{S(z)} \cdot (P_1 - P_2) P_p P_s, \quad (1)$$

$$\frac{\partial P_s}{\partial z} + \frac{1}{C} \frac{\partial P_s}{\partial t} = \frac{g}{S(z)} \cdot (P_1 - P_2) \cdot P_p P_s, \quad (2)$$

其中  $P_p$ 、 $P_s$  分别为泵浦光及 Raman 光的功率,  $\omega_p$ 、 $\omega_s$  分别为两者的频率。  $S(z)$  是沿传播方向变化的聚焦光束的截面积,  $P_1$ 、 $P_2$  分别是处于基态及 Raman 散射终态的粒子数密度  $n_1$ 、 $n_2$  与总的金属蒸气原子数密度  $n$  之比。

由于每产生一个 Raman 光子, 即有一个金属原子从基态被泵浦到 Raman 终态, 因此  $n_1$  及  $n_2$  的变化满足速率方程

$$\frac{dn_1}{dt} = -\frac{dn_2}{dt} = -\frac{g}{S^2} \frac{(P_1 - P_2)}{\hbar\omega_s} \cdot P_p P_s + \frac{n_2}{T_1}, \quad (3)$$

$$n_1 + n_2 = n. \quad (4)$$

由式(3)、(4)可得

$$\frac{\partial(P_1 - P_2)}{\partial t} = -\frac{2g}{S^2(z)} \cdot \frac{(P_1 - P_2)}{\hbar\omega_s} P_p P_s + \frac{1 - (P_1 - P_2)}{T_1}. \quad (5)$$

$P_1 - P_2$  表征着在受激 Raman 散射过程中粒子数的饱和程度。当全部原子都处于基态时,  $P_1 - P_2 = 1$ ; 当处于基态与终态的粒子数相等时,  $P_1 - P_2 = 0$ , 由式(1)、(2)可见, 此时 Raman 转换过程已不能发生, 这部分介质可认为已完全饱和。由式(5)可以看到, 由于在焦斑附近光束截面最小, 聚焦的泵浦光束在该处有最强的功率密度, 而沿光束传播方向单位长度上可利用的原子数又最少, 因此这部分介质将受到强烈的抽空作用, 这将对受激散 Raman 射过程产生严重影响。

作坐标变换  $\tau = t - z/C$ ,  $Z = z$ , 则(1)、(2)、(5)式可简化为

$$\frac{\partial P_p}{\partial Z} = -\frac{\omega_p}{\omega_s} \frac{g}{S(Z)} \cdot (P_1 - P_2) P_p P_s, \quad (6)$$

$$\frac{\partial P_s}{\partial Z} = \frac{g}{S(Z)} \cdot (P_1 - P_2) P_p P_s. \quad (7)$$

$$\frac{\partial}{\partial \tau} (P_1 - P_2) = -\frac{2g}{S^2} \cdot \frac{(P_1 - P_2)}{\hbar\omega_s} \cdot P_p P_s + \frac{1 - (P_1 - P_2)}{T_1}. \quad (8)$$

方程(6)~(8)构成了本文的工作方程组。

波长为 308 nm 的 XeCl 准分子激光在铅原子电子能级间的近共振受激 Raman 散射产生波长为 459 nm 的蓝光, 同时铅原子由基态 ( $6P_2^3P_0$ ) 跃迁到终态 ( $6P_2^3P_2$ )<sup>[1]</sup>。  $6P_2^3P_2$  是个亚稳态, 为在电激励铅蒸气激光器中产生  $6P7S^3P_1 - 6P_2^3P_2$  的激光振荡, 脉冲重复率必须低于 6 kHz<sup>[7]</sup>, 由此可以估计  $6P_2^3P_2$  的能级寿命应长于微秒量级。对于脉宽小于 100 ns 的 XeCl 准分子泵浦激光脉冲, 式(8)右边第二项的 Raman 终态驰豫项应能忽略。

假定入射到 Raman 池的 XeCl 泵浦光束随时间呈 Gauss 型变化,

$$P_{p0} = \frac{E_0}{T\sqrt{\pi}} \exp\left[-\left(\frac{t}{T}\right)^2\right], \quad (9)$$

其中  $E_0$  为泵浦激光脉冲的能量,  $T$  为脉冲半宽度。在铅 Raman 池入口处的 Raman 光由自发 Raman 散射产生, 假定其随时间的变化满足

$$P_{s0} = P_{p0} \cdot \exp(-3t). \quad (10)$$

计算结果对于所假设的 Raman 池入口处的自发 Raman 散射强度不很敏感, 当将式(10)中

的因子  $\exp(-30)$  扩大 50 倍时, 对于输出的 Raman 光脉冲能量的计算结果的变化小于 4%。对于  $(P_1 - P_2)$  的初始条件假定为沿 Raman 池全部铅原子均处于基态,  $P_1 - P_2 = 1$ 。聚焦的激光束截面积随传播距离  $Z$  的变化取为<sup>[8]</sup>

$$S(Z) = S_0(1 + Z/Z_0)^2, \quad (11)$$

其中  $S_0$  为焦斑处的光束截面积,  $Z_0$  为由透镜焦距及入射光束截面积所决定的参数。在 Djeu 等人<sup>[2]</sup>的 XeCl 激光泵浦铅 Raman 散射实验中, 当铅蒸气压约 1 Torr, Raman 池温约 1000°C 时达到阈值, 根据他们的泵浦条件, 时间的 Raman 增益系数约为 0.6~1 cm/GW。在本文计算中, 相应的增益系数  $g$  取为 0.8 cm/GW。在上述初始条件及边界条件下, 用四阶 Runge-Kutta 方法对方程 (6)~(8) 进行数值求解。

### 三、结果和讨论

光束截面积为  $2 \times 2 \text{ cm}^2$ , 发散角  $\sim 2 \text{ mrad}$ 、脉宽约 60 ns 的 XeCl 准分子泵浦光束被焦距为 1.3 m 的透镜聚焦于加热长度为 1 m 的铅 Raman 池中央。当 Raman 池温度为 1220°C, 相应的铅蒸气压约 17 Torr 时, 由 Raman 池输出的 Raman 光能量随输入的泵浦光能量变化的计算结果如图 1 中曲线 (a) 所示。在泵浦光能量约 280 mJ 左右达到阈值后, Raman 光能量随泵浦光能量先是迅速上升, 但随后上升的速率逐渐减小。当泵浦光能量在 500~900 mJ 范围内, 曲线 (a) 近似为  $\frac{dE_s}{dE_p} = 0.23$  的直线。曲线 (b) 所示为在与 (a) 相似条件下, 令方程 (6)~(8) 中的  $\frac{\partial}{\partial \tau}(P_1 - P_2) = 0, P_1 - P_2 = 1$ , 是完全不存在基态粒子数抽空的条件, 所得之计算结果。因此曲线 (b) 与 (a) 的差别表征了铅 Raman 池中粒子数的饱和效应对 Raman 能量转移过程的影响。在阈值附近 (b) 与 (a) 重合, 但当泵浦光能量  $\sim 350 \text{ mJ}$ , 相应的 Raman 光能量约 60 mJ 时, (b) 已开始偏离 (a)。尽管此时在与泵浦光束相互作用的体积内, 由基态  $^3P_0$  被激发到亚稳态  $^3P_2$  的原子数仅占原子总数的 4%, 但在焦斑附近的区域内, 此比例已达 14%, 因此基态原子抽空效应已开始影响 Raman 频移过程。随着泵浦光能量的增加, (b) 与 (a) 之间的差别逐渐增大。由图 1 可见, 当入射的泵浦光能量为 600 mJ 时, (a) 所示的能量转移效率  $\eta \sim 27\%$ , 而由曲线 (b) 所得到的效率  $\eta$  约为 50%。因此, 在此条件下的粒子数饱和效应严重限制了能量转换效率的提高。

实验中测量得到的 Raman 光脉冲能量随泵浦光能量的变化如图 1 中曲线 (c) 所示。其

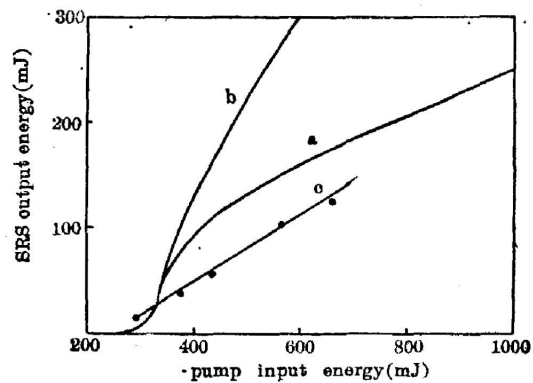


Fig. 1 Calculated energy of Stokes emission as a function of incident laser energy at a constant Pb vapor pressure of 17 Torr, with depletion of the ground state (a), an assumed invariable occupancy of the ground state (b), and experimental data (c), respectively

中入射到 Raman 池的泵浦光能量通过 Raman 在池入射窗口前放置的对波长为  $3080 \text{ \AA}$  的 XeCl 准分子激光束具有不同反射率的镀介质膜石英片而加以改变。由于受到衰减片的透过率的限制, 在阈值泵浦能量附近的较细致的测量尚有待以后进行。比较曲线(c)与曲线(a)可以发现, 在阈值附近, Raman 光脉冲能量的实验值高于理论值; 而在离阈值较远的区域, 实验曲线比理论曲线要低一些。它可能是由于在泵浦光束截面内, 光强的不均匀分布所引起<sup>[9]</sup>。从图 1 中还可以明显看到, 在泵浦脉冲能量较高的区域, 实验曲线(c)的变化趋势与考虑到基态粒子数抽空效应的理论曲线(a)基本一致, 而与在恒定的基态粒子数密度的假定下的计算结果曲线(b)有较大的差别。由此也可以看到在理论模型中包括描述粒子数抽空效应的方程(8)的必要性。

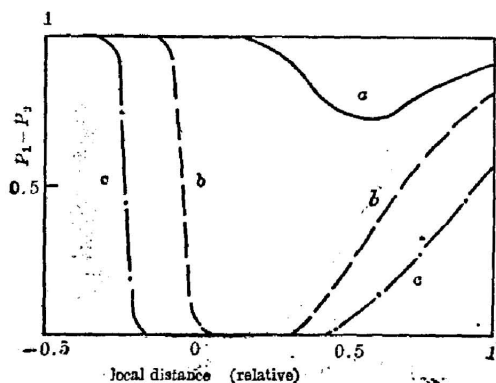


Fig. 2. Variation of the difference between the occupancies of the ground state ( $^3P_0$ ) and of the final Raman level ( $^3P_2$ ) along the length of leap vapor Raman cell, with incident XeCl laser energy of 350 mJ (a), 600 mJ (b), and 1000 mJ (c), respectively

泵浦脉冲能量的增大, 粒子数饱和的程度逐渐加剧, 存在这种饱和的区域逐渐扩大, 开始出现粒子数饱和的点逐渐向输入窗口方向移动。正如从式(8)可以预料的那样, 由于在焦斑附近, 光束有最小的截面, 因此饱和效应也最为严重。从曲线(b)与(c)都可以看到存在着一个粒子数完全饱和的区域,  $P_1 - P_2 = 0$ , 这样的区域对 Raman 光的放大过程已不起作用。

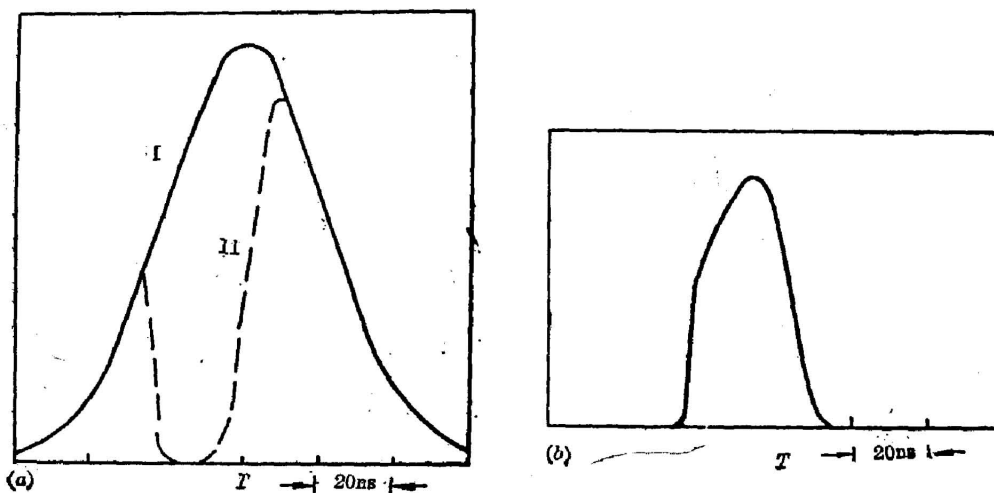


Fig. 3 (a) Incident (I), and transmitted (II) pump-laser pulses;  
(b) Raman-shifted Stokes pulse

图 2 给出了当能量分别为 350(a)、600 (b) 及 1000 mJ(c) 的泵浦光脉冲终了时, 基态与亚稳态的占有几率之差  $P_1 - P_2$  沿铅 Raman 池的分布。当泵浦光能量较低时, 基态原子的抽空首先在光束通过焦斑以后的区域发生, 这表明在通过焦斑区域以后, 由自发 Raman 散射起始的 Raman 光脉冲才被放大到足以产生可观的喇曼能量转移过程。随着

泵浦脉冲能量的增大, 粒子数饱和的程度逐渐加剧, 存在这种饱和的区域逐渐扩大, 开始出现粒子数饱和的点逐渐向输入窗口方向移动。正如从式(8)可以预料的那样, 由于在焦斑附近, 光束有最小的截面, 因此饱和效应也最为严重。从曲线(b)与(c)都可以看到存在着一个粒子数完全饱和的区域,  $P_1 - P_2 = 0$ , 这样的区域对 Raman 光的放大过程已不起作用。

入射到铅 Raman 池的能量为 660 mJ 的泵浦光脉冲、与其相应的透射脉冲波形及输出的喇曼光脉冲波形分别示于图 3 的 (a) 与 (b)。透射的泵浦脉冲波形上存在一个抽空区域, 并相对于入射的泵浦光脉冲的峰值, 呈现明显的不对称。这是由于铅 Raman 池中的基态原子受到了泵浦脉冲前沿的抽空, 因而当脉冲后沿通过时, 介质呈现较小的 Raman 增益。图 (b) 所示的 Raman 光脉冲波形有一个较陡的前沿, 然后基本跟随泵浦光波形的变化。但同样由于 Raman 介质饱和的影响, Raman 光波形相对于泵浦光波形的峰值也是不对称的, 当泵浦光强度还相当高时, Raman 光脉冲已经终止。基态铅原子数的抽空对于输出的 Raman 光脉冲波形的这种影响已在实验中观察到<sup>[1]</sup>。

当泵浦脉冲能量固定为 660 mJ 时, 输出的 Raman 光能量随 Raman 池中铅蒸气压变化的计算结果如图 4 中 (a) 所示。与图 2 中 Raman 光能量随泵浦脉冲能量的变化曲线相类似, 当在铅蒸气压为 6 Torr 左右达到阈值后, 喇曼光能量随铅蒸气压有一个很陡的上升; 但当蒸气压大于 10 Torr 后, 曲线 (a) 的上升逐渐减缓。在上述泵浦条件下的实验测量结果如图 4 中曲线 (b) 所示。比较 (b) 与 (a) 可以看到它们有相似的形状与变化趋势。但实验曲线 (b) 在蒸气压约 3.5 Torr 时达到阈值, 低于理论计算的阈值  $\sim 6$  Torr。在蒸气低于 8 Torr 的区域, 实验值高于理论值; 而在铅蒸气压较高的区域, 实验值比理论值低。造成这种差别的主要原因可能是由于在我们的理论模型中假定了聚焦光束的光强在光束截面内是均匀分布的。由于复杂的模式结构及衍射效应, 聚焦光束的实际光强分布将是不均匀的。在某些光强较高的区域, 可能在较低的铅蒸气压处即已达到受激 Raman 散射的阈值; 随着铅蒸气压的升高, 各强度较弱的区域相继达到阈值, 因此实验曲线在阈值附近的上升比理论曲线平缓。由于可能存在着这样一些强度相当弱的区域, 即使在实验中所能达到的最高铅蒸气压 17 Torr 处, 也还未能有效地转换为 Raman 光能量, 因此导致实验测得的转换效率低于理论值。Fulghum 等人<sup>[9]</sup>研究 XeF<sub>2</sub> 激光在高压 H<sub>2</sub> 中的受激 Raman 散射时也已观察到泵浦光强的不均匀分布所引起的阈值降低及在高泵浦能量时低于理论值的转换效率。

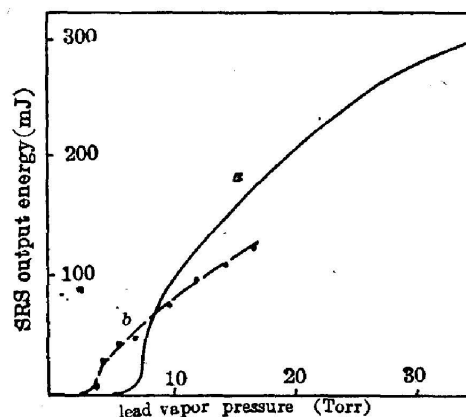


Fig. 4 Energy of Stokes emission as a function of Pb vapor pressure with 660 mJ incident UV laser energy. (a)—theoretical curve, (b)—experimental curve

#### 四、结 束 语

本文的计算结果表明, 聚焦的泵浦光束的金属蒸气的 Raman 散射中, 存在着基态粒子数的抽空效应, 这种效应在焦斑附近的区域尤为强烈。它引起 Raman 光脉冲波形的不对称, 并限制了 Raman 转换的效率。所计算的喇曼光脉冲能量随铅蒸气压变化的曲线形状与趋势与实验测量结果基本一致。为使计算结果与实验值定量上也能得到满意的符合, 进一

步的工作应当在理论模型中包括在泵浦光束截面内, 光强不均匀分布的影响。当然这将大大增加计算的工作量。

本文的工作是在准稳态近似下进行的, 即假设喇曼能级相干极化的去位相时间常数与泵浦脉冲宽度相比可忽略不计。对于有限的去位相速率的影响以及可能出现的合作效应正在研究之中。

### 参 考 文 献

- [1] R. Burnham, N. Djeu; *Opt. Lett.*, 1978, **3**, No. 6 (Dec), 215.
- [2] S. J. Brosnan; *Opt. Lett.*, 1982, **7**, No. 4 (Apr), 154.
- [3] D. Cotter *et al.*; *Opt. Commun.*, 1978, **26**, No. 2 (Aug), 251.
- [4] J. L. Caristen *et al.*; *Opt. Commun.*, 1975, **14**, No. 1 (May), 8.
- [5] I. V. Tomov *et al.*; *Opt. Quant. Electr.*, 1985, **17**, No. 3 (Mar), 207.
- [6] A. Yariv; *Quantum Electronics*, (John Wiley & Sons, Inc., New York, London, Sydney, Toronto, 1975), 470.
- [7] R. S. Anderson *et al.*, *IEEE Journ. Quant. Electron.*, 1976, **QE-12**, No. 5 (May), 313.
- [8] A. Maitland *et al.*; *Laser Physics*, (North-Holland Publishing Company, Amsterdam-London, 1969), 153.
- [9] S. T. Fulghum *et al.*; *IEEE Journ. Quantum Electron.*, 1984, **QE-20**, No. 3 (Mar), 218.

## Effects of ground state depletion of atoms in stimulated Raman scattering of metal vapors

HUO YUNSHENG, LOU QIHONG, DING ZIAN AND WANG RENWEN  
(Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Academia Sinica)

(Received 4 September 1986)

### Abstract

The effects of ground state depletion of atoms on the characteristics of stimulated Raman scattering in metal vapors are studied by simultaneously solving the rate-equation of the atom energy levels related in the Raman scattering, and the equations describing the energy-conversion from the focused pump laser pulses to the Raman down-converted pulses. The ground state of metal atoms are depleted most strongly in the regions near the focal spots of the pump beams because of the higher intensities of light and smaller available medium volume in those regions. This will result in the unsymmetrical shapes of the Raman-shifted pulses for the front and rear edges, and will reduce the energy-conversion efficiency.

**Key Words:** Stimulated Raman scattering of metal vapors,