

宽频带聚焦泵浦准稳态受激电子喇曼 散射的增益因子和能量转换效率

莫春松* 楼祺洪 王润文
(中国科学院上海光学精密机械研究所)

提 要

本文采用 Raman-Maxwell-Bloch 方程, 计算了宽频带聚焦泵浦准稳态受激电子喇曼散射的增益因子和能量转换效率。在计算中考虑了泵浦抽空、喇曼介质对泵浦光的吸收和喇曼介质的饱和效应。计算结果与 XeCl 激光在钡蒸汽中的受激喇曼散射实验基本上符合。

关键词: 宽频带聚焦泵浦; 受激电子喇曼散射。

一、引 言

通常研究受激喇曼散射的理论都采用平面近似^[1,2], 并且假定泵浦激光是线宽为零的严格单色光, 因而适用于单频场的准直泵浦情形。但在实际受激喇曼散射实验中, 入射泵浦光总存在有限的光谱宽度, 而且为了获得高的峰值功率密度, 常常采用聚焦泵浦方式, 这样就需要对发展起来的理论进行修正, 使它们能更好地反映实际情况。

Carman^[3]和 Raymer^[4]在采用平面波近似情况下, 研究有限泵浦带宽对受激喇曼散射的影响。他们的结果表明, 在色散介质中, 喇曼光增益将随泵浦带宽的增大而减少, 这一结论已从实验上得到证实^[5]。Christov 和 Tomov^[6]用一种简化方法研究泵浦光是严格单色的情况下, 聚焦方式泵浦产生的喇曼光的生长。

我们在考虑泵浦抽空、喇曼介质的吸收损耗和饱和效应的情况下, 研究宽频带聚焦泵浦的受激电子喇曼散射, 分析并计算了准稳态近似下的增益因子和能量转换效率, 与 XeCl 激光在钡蒸汽中受激喇曼散射的实验结果比较, 两者基本相符合。

二、理论分析

不存在后向散射的情况下, 描述原子蒸汽受激电子喇曼散射过程动力学变量的 Raman-Marxwell-Bloch 方程如下:

$$\frac{\partial \varepsilon_L}{\partial z} + \frac{n_L}{C} \frac{\partial \varepsilon_L}{\partial t} = \beta_L \omega_L \varepsilon_S v_s, \quad (1a)$$

$$\frac{\partial \varepsilon_S}{\partial z} + \frac{n_S}{C} \frac{\partial \varepsilon_S}{\partial t} = -\beta_S \omega_S \varepsilon_L v_s, \quad (1b)$$

收稿日期: 1987年11月9日; 收到修改稿日期: 1988年10月5日

* 现在广西省南宁市广西电子研究所。

$$\dot{v}_\lambda = \alpha \varepsilon_S \varepsilon_L \rho_\lambda - v_\lambda / T_2, \quad (1e)$$

$$\dot{\rho}_\lambda = -\alpha \varepsilon_S \varepsilon_L \rho_\lambda - (\rho_\lambda - \rho_\lambda^{\text{eq}}) / T_1. \quad (1d)$$

式中:

$$\alpha = \mu_S \mu_L / 2 \hbar^2 \Delta \omega_0, \quad \beta_{L(S)} = N_0 \mu_0 O \mu_S \mu_L / 4 \hbar \Delta \omega_0 n_{L(S)},$$

$\varepsilon_i, \omega_i, n_i$ 分别是泵浦光 ($i=L$) 和喇曼光 ($i=S$) 的振幅、圆频率以及折射率; v_λ 是反映受激喇曼过程的喇曼极化率的正交分量; ρ_λ, T_1, T_2 分别是初、终态的布居数几率差、纵向弛豫时间和横向弛豫时间; μ_L 和 μ_S 分别对应着泵浦激发和喇曼跃迁的电偶极矩; $\Delta \omega_0$ 表示泵浦失谐量; ρ_λ^{eq} 代表 ρ_λ 的热平衡值。

在通常受激电子喇曼散射中, T_2 的范围为 10^{-10} 至 10^{-9} sec, 而泵浦光脉宽 $\tau_p \sim 10^7$ sec. 准稳态近似 $\tau_p \gg T_2$ 得到满足, 则有 $\dot{v}_\lambda \ll v_\lambda / T_2$, 因此:

$$v_\lambda = \alpha T_2 \varepsilon_S \varepsilon_L \rho_\lambda. \quad (2)$$

由于(1a)~(1d)式采用了均匀平面波近似, 因而适用于准直泵浦情形。令光束截面为 A (在准直泵浦情形, 它是一个不随传播距离而改变的常数, 并假定喇曼光和泵浦光有相同截面), 将(2)式代入(1a)、(1b)、(1d)式, 得到关于功率 $P_i (= A \varepsilon_0 O \varepsilon_i^2 / 2, i=L, S)$ 的方程为

$$\frac{\partial P_L}{\partial z} + \frac{n_L}{C} \frac{\partial P_L}{\partial t} = -\frac{\omega_L}{\omega_S} \frac{n_S}{n_L} \gamma_S \rho_\lambda P_L P_S / A, \quad (3a)$$

$$\frac{\partial P_S}{\partial z} + \frac{n_S}{C} \frac{\partial P_S}{\partial t} = \gamma_S \rho_\lambda P_L P_S / A, \quad (3b)$$

$$\dot{\rho}_\lambda = -4\alpha^2 T_2 P_L P_S \rho_\lambda / (\varepsilon_0 O)^2 A^2 - (\rho_\lambda - \rho_\lambda^{\text{eq}}) / T_1. \quad (3c)$$

式中: $\gamma_S = -4\alpha \beta_S \omega_S T_2 / \varepsilon_0 O$ 。方程(3c)可化为如下形式:

$$\rho_\lambda = \rho_\lambda^{\text{eq}} - (4\alpha^2 T_2 e^{-t/T_1} / \varepsilon_0^2 O^2 A^2) \int_0^t P_L(t') P_S(t') \rho_\lambda(t') e^{t'/T_1} dt'. \quad (3d)$$

为研究聚焦方式泵浦, 将(3a)~(3c)推广, 使之适用光束截面 A 随传播距离而改变的情形: $A = A(z)$ 。

令 $z = z, \tau = t - nz/C$, 利用 $n_L \approx n_S$, 考虑(3d)式的一级近似解和由于有限泵浦带宽 $\Delta \omega$ 对 γ_S 的修正 $\gamma_S(\Delta \omega)$, 并引入泵浦光和喇曼光的衰减常数 α_L, α_S , 得到宽带泵浦的功率方程如下:

$$\frac{\partial P_L}{\partial z} + \alpha_L P_L = -\frac{\omega_L}{\omega_S} \gamma_S(\Delta \omega) \rho_\lambda P_L P_S / A(z), \quad (4a)$$

$$\frac{\partial P_S}{\partial z} + \alpha_S P_S = \gamma_S(\Delta \omega) \rho_\lambda P_L P_S / A(z), \quad (4b)$$

$$\rho_\lambda = \rho_\lambda^{\text{eq}} [1 - (4\alpha^2 T_2 e^{-\tau/T_1} / \varepsilon_0^2 O^2 A^2(z)) \int_0^\tau P_L(t') P_S(t') e^{t'/T_1} dt']. \quad (4c)$$

其中光束截面 $A(z)$ 在透镜聚焦过程中随传播距离的变化为高斯光束的传播变化:

$$A(z) = A_0 [1 + C(z-f)^2]. \quad (4d)$$

这里 A_0 是焦面上的光斑面积, f 是聚焦透镜的焦距, C 是与光束发散角有关的量。

由于关心的是能量转换效率, 故可以对实际入射泵浦波形进行简化, 以方便问题的讨论。假定泵浦波是能量 E_L 、脉宽 τ_p 的方波, 则:

$$P_L(0, t) = \begin{cases} E_L / \tau_p & 0 \leq t \leq \tau_p, \\ 0 & t < 0, t > \tau_p. \end{cases} \quad (5a)$$

喇曼光起源于自发辐射, 其强度 $I_S(0, t) = 10^{-3} \text{ W/cm}^{2[7]}$, 则:

$$P_s(0, t) = \begin{cases} I_s(0, t)A(0) & 0 \leq t \leq \tau_p, \\ 0 & t < 0, t > \tau_p. \end{cases} \quad (5b)$$

在初始时刻,喇曼介质的粒子处于基态:

$$\rho_{\lambda}(z, 0) = \rho_{\lambda}^{\text{eq}} \simeq -1. \quad (5c)$$

方程(4a)~(4c)、式(4d)、以及初、边值条件(5a)~(5c)就构成了解决宽频带聚焦泵浦准稳态受激喇曼散射能量转换率问题的出发点。

三、增益因子

先用方程(4a)、(4c)分析喇曼转换过程的增益因子 G_s 。

(1) 单色光泵浦情形 考察式(3b)可知:单频场泵浦的受激电子喇曼散射增益因子 G_s 为 $\gamma_s \rho_{\lambda}$ 。将 α 和 β_s 的值代入 γ_s 的表达式中,由此求得:

$$G_s = -N_0 \mu_0 \mu_s^2 \mu_L^2 \omega_s T_2 \rho_{\lambda} / 2\hbar^3 \Delta\omega_0^2 m \epsilon_0. \quad (6a)$$

由初态 $|1\rangle$ 到中间态 $|2\rangle$ 和终态 $|3\rangle$ 到中间态 $|2\rangle$ 的吸收振子强度 f_{12} 、 f_{32} 与 μ_L^2 和 μ_s^2 有如下关系^[8]:

$$f_{12} = 2m\omega_{12}\mu_L^2/3\hbar e^2, \quad f_{32} = 2m\omega_{23}\mu_s^2/3\hbar e^2.$$

式中 ω_{12} 和 ω_{23} 分别是态 $|1\rangle$ 和态 $|2\rangle$ 、态 $|2\rangle$ 和态 $|3\rangle$ 的频率间隔, e 和 m 分别是电子的电荷和质量。由(6a)得到用 f_{12} 和 f_{32} 表示的增益因子 G_s 为:

$$G_s = -\frac{9}{2\hbar} \left(\frac{e^2}{2m\epsilon_0 C} \right)^2 \frac{f_{12} f_{32} \omega_s (N_0 \rho_{\lambda}) T_2}{\omega_{12} \omega_{23} n (\Delta\omega_0)^2}. \quad (6b)$$

应用上式对 308 nm 的泵浦光在 Ba 蒸汽中受激电子喇曼散射的增益因子 G_s 做一估算。

Ba 原子的初态、中间态、终态分别是 $(6s)^2 1S_0$ 、 $6s6p 1P_1$ 和 $6s5d 1D_2$ 。 $\omega_{12} = 32547 \text{ cm}^{-1}$, $\omega_{23} = 21154 \text{ cm}^{-1}$, $\omega_s = 21073 \text{ cm}^{-1}$, $\Delta\omega_0 = -79 \text{ cm}^{-1}$ 。振子强度 f_{12} 和自发辐射速率有如下关系^[9]:

$$A_{21} = e^2 \omega_{12}^2 g_1 f_{12} / 2\pi \epsilon_0 m C^3 g_{2c}$$

式中 g_1 和 g_2 分别是态 $|1\rangle$ 和态 $|2\rangle$ 的简并因子。 $A_{21} \sim 0.41 \times 10^8 \text{ sec}^{-1}$ ^[10], 则 $f_{12} \sim 0.175$ 。同理可得: $f_{32} \sim 0.093$ 。假定喇曼线宽是 Doppler 增宽引起, 则 Ba 蒸汽被加热至 1000°C 时, $T_2 \sim 0.214 \text{ ns}$, 此时 $N_0 \sim 4.5 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ 。不考虑 Ba 原子的基态抽空, 则 $\rho_{\lambda} \sim -1$ 。将这些参数代入(6b), 得: $G_s \sim 1.375 \times 10^{-5} \text{ cm/W}$ 。远远大于通常受激电子喇曼散射的典型值 $G_s \sim 10^{-8} \text{ cm/W}$ 。这主要是认为单色光泵浦, 没有考虑泵浦光的线宽所致。

(2) 宽频带泵浦情形 由于入射泵浦激光总存在一光谱宽度, 例如 XeCl 自由振荡时约为 10 \AA , 而研究表明宽带泵浦将导致喇曼光能量降低^[3, 11], 因此, 必须考虑有限泵浦带宽对增益因子的影响。

谱宽为 $\Delta\omega$ 泵浦的受激喇曼散射的增益因子 $G_s(\Delta\omega)$ 和单色光泵浦的增益因子 G_s 有如下关系^[12]:

$$G_s(\Delta\omega) = G_s / \Delta\omega T_2. \quad (7)$$

实验中, XeCl 泵浦激光四条谱线的带宽 $\sim 45 \text{ cm}^{-1}$, 因此实际增益因子 $G_s(\Delta\omega) \sim 7.6 \times 10^{-9} \text{ cm/W}$, 比假定单色光泵浦的增益因子要小三个数量级, 与 G_s 的典型值基本相符。由此可见做这种考虑的必要性。

四、能量转换效率

用方程(4a)~(4c)、式(4d)、以及初、边值条件(5a)~(5c)研究 XeCl 308 nm 紫外激光在 Ba 蒸汽中受激电子喇曼散射的能量转换效率随各实验参量的变化。

首先要确定一些基本参数。处于终态 $6s5d^1D_2$ 的 Ba 原子主要通过与喇曼池的池壁、基态 Ba 原子、以及缓冲气体的原子碰撞实现消激发,纵向弛豫时间 T_1 可取为 10^{-5} sec^[13]。

入射泵浦光的光斑约为 4 cm^2 ,用焦距 $f=100\text{ cm}$ 的透镜聚焦,焦面上光斑约 0.02 cm^2 ,由此得光束截面 $A(z)$ 的变化规律为:

$$A(z) = 0.02[1 + 0.018(z - 100)^2]。 \quad (8)$$

根据文献[10]给出的数据,用如下函数关系来拟合 Ba 的饱和蒸汽压 $p(\text{Torr})$ 与温度 $T(\text{K})$ 的关系:

$$p = e^{-a/T+b}。 \quad (9)$$

其中 $a=18025.054$, $b=15.937271$ 。由此得到喇曼池内 Ba 原子数密度 $N_0(\text{cm}^{-3})$ 随温度 $T(\text{K})$ 的变化:

$$N_0 = 8.0521 \times 10^{25} / T e^{a/T}。 \quad (10)$$

由于近共振泵浦,必须考虑 Ba 蒸汽对泵浦光和喇曼光的单光子吸收,吸收系数为^[14]:

$$\alpha = 2\pi r_e c f N I / (\Delta\omega)^2。 \quad (11)$$

式中 r_e 为经典电子半径, f 是振子强度, N 为下能级粒子数密度, I 表示跃迁线宽, $\Delta\omega$ 代表失谐量。通过计算,得 Ba 蒸汽对泵浦光(308 nm)的吸收系数 $\alpha_L \sim 0.01\text{ cm}^{-1}$,而对喇曼光(475 nm), $\alpha_S \sim 10^{-7}\text{ cm}^{-1}$ 。 α_S 与 α_L 相比可以忽略,计算中将不考虑 α_S 的影响。

首先研究喇曼池的缓冲气体压力对能量转换率的影响。Rieger 通过研究得到了泵浦光(308 nm)和喇曼光(488 nm)的吸收率 A 随喇曼池压力 $p(\text{Torr})$ 的变化关系曲线图,根据他的实验结果,用如下两个函数关系来拟合吸收率 A 和压力 p 的关系:

$$\text{对 } 308\text{ nm}, A_L = 0.4 p / 2\sigma, \quad (12a)$$

$$\text{对 } 488\text{ nm}, A_S = 0.6(1 - e^{-p/96})。 \quad (12b)$$

但是,喇曼池内除缓冲气体外还有喇曼介质,为了真实反映缓冲气体的吸收,必须在(12)式中乘上一个权重因子 g ,以扣除喇曼介质的吸收:

$$A_L = g \times 0.4 p / 2\sigma, \quad (13a)$$

$$A_S = g \times 0.6(1 - e^{-p/96})。 \quad (13b)$$

式中 $0 < g \leq 1$, 吸收系数 $\sigma(\text{cm}^{-1})$ 和吸收率 A 有如下关系:

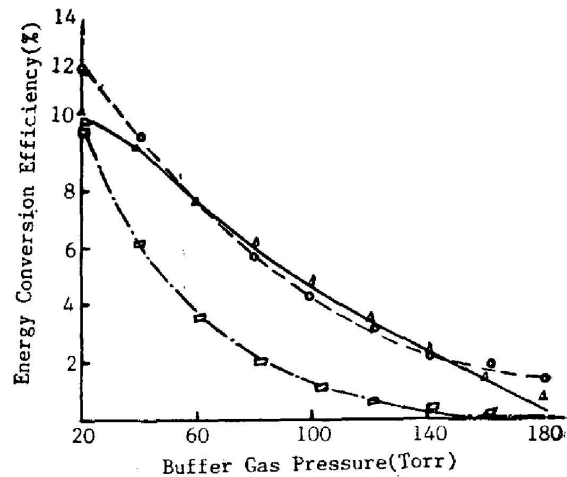


Fig. 1 Energy Conversion Efficiency as a Function of the Buffer Gas Pressure. Solid line: experimental value.

Broken line: calculated result with $A_L=0.4p/200$ and $A_S=0.6(1-\exp(-p/96))$ Dash-Dotted line: calculated result with $A_L=0.2p/200$ and $A_S=0.3 \times (1-\exp(-p/96))$

$$\sigma_i = -\ln(1 - A_i)/l \quad (i = L, S). \quad (14)$$

$l = 90 \text{ cm}$ 是喇曼池的长度。实验也选用氦气做缓冲气体, 能量转换率随氦气压力变化如图 1 中的实线。由于波长 488 nm 和 475 nm 很接近, 借用 (13) 式来分析氦气压力对转换率的影响。将泵浦光和喇曼光的吸收系数 σ_L, σ_S 分别引入方程 (4a) 和 (4b), 取喇曼池的温度为 1000°C , 则 $G_S(\Delta\omega) \sim 7.7 \times 10^{-9} \text{ cm/W}$, $\alpha_L \sim 0.01 \text{ cm}^{-1}$, 泵浦脉冲能量为 350 mJ , 脉宽 50 ns , He 气压力在 20 至 180 Torr 范围变化, 对不同的 g 值进行计算, 当 $g = 1$ 时结果见图 1 的点划线, 计算结果与实验相差较大, 因为此时没有消除喇曼介质吸收的影响。而当 $g = 0.5$ 时, 即:

$$A_L = 0.2p/200, \quad (15a)$$

$$A_S = 0.3(-e^{-p/96}). \quad (15b)$$

计算结果与实验符合得较好(见图 1 的虚线)。因此可以推断: 氦气对 308 nm 泵浦光和 475 nm 喇曼光的吸收可以用 (15) 式来表示。

其次研究加热温度对能量转换率的影响, 不同的加热温度对应着喇曼池内不同的 Ba 原子数, 而 Ba 原子数的改变将导致两个重要因素发生变化。首先是增益因子 $G_S(\Delta\omega)$ 改变, $G_S(\Delta\omega)$ 随温度 T 有如下变化关系:

$$G_S(\Delta\omega) = 13.77/T e^{a/T}. \quad (16a)$$

Ba 蒸汽对泵浦光的吸收系数 α_L 也发生变化, α_L 随 T 的变化为:

$$\alpha_L = 4.97 \times 10^5 / \sqrt{T} e^{a/T}. \quad (16b)$$

取泵浦脉冲能量 350 mJ , 脉宽 50 ns , 将 (8)、(15)、(16) 等式代入方程 (4) 求数值解, 结果见图 2。

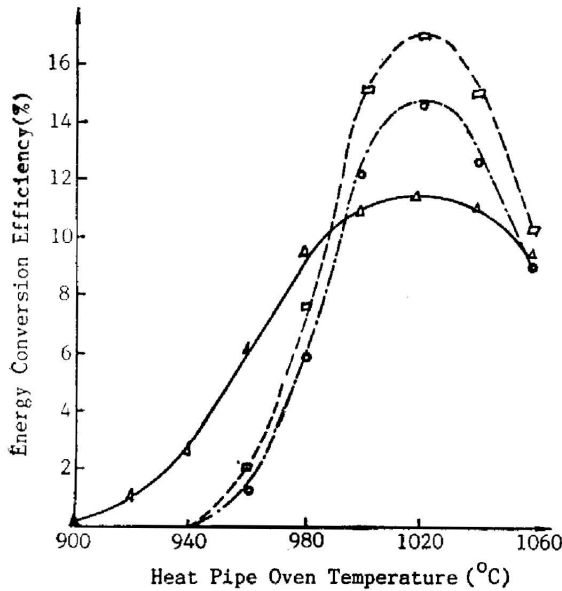


Fig. 2 Energy Conversion Efficiency versus the Heat Pipe Oven Temperature.

Comparison of experimental (solid line) and calculated results with 20 Torr buffer gas (broken line) and without buffer gas (dash-dotted line)

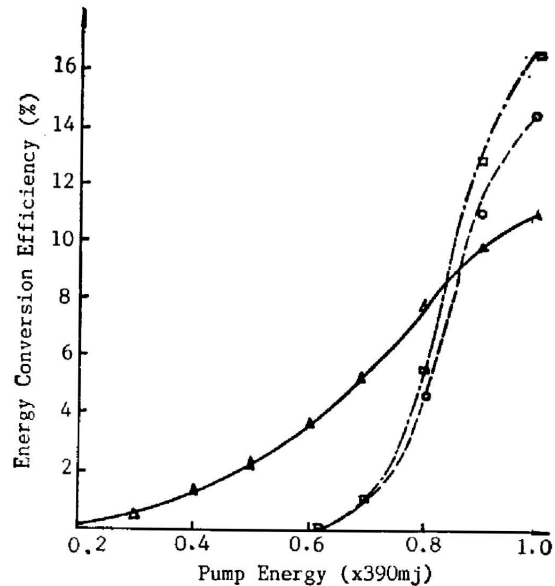


Fig. 3 Dependence of Energy Conversion Efficiency on the Pump Energy.

The experimental curve (solid line) is compared to the calculated curve with 20 Torr buffer gas (broken line) and without buffer gas (dash-dotted line)

为了方便比较,同时说明缓冲气体对转换率的影响,将有氦气($p=20$ Torr)和没有氦气的计算结果以及实验曲线同时绘在图 2 上。可见,在实验误差范围内,计算值和实验值基本一致,并有相同的变化趋势。这可解释为:温度升高,使增益因子 $G_s(\Delta\omega)$ 增加,有效地提高喇曼光能量,表现为转换率随温度升高而增大;但温度的升高同时也导致吸收系数的变大,制约了喇曼光能量的增加,使转换率不是单调地增大,而是在某一温度达到最大值。进一步提高加热温度,一方面喇曼介质的饱和使喇曼光不再增强,另一方面吸收系数的提高使喇曼光能量减少,于是表现出转换率随温度升高而减少的特性。

最后研究泵浦能量对能量转换率的影响。图 3 是能量转换率随泵浦能量变化的理论和实验曲线图。计算时,取喇曼池温度为 1050°C 。由图可见,计算和实验结果的变化趋势基本符合:泵浦能量越高,转换效率越高。由于没有考虑高泵浦能量时的非线性吸收,理论曲线表现出更强烈的阈值特性。考虑氦气(20 Torr)的影响时,由于接近实验情况,与不考虑氦气相比计算结果与实验更为符合。

由于我们作了较全面的分析和考虑,计及泵浦带宽对增益因子的影响、缓冲气体的吸收损耗、喇曼介质对泵浦光的线性吸收,在计算喇曼光的能量转换率时,理论和实验基本相符。

作者对霍芸生、魏运荣、董景星、辜红平等同志在实验中给予的帮助表示感谢。

参 考 文 献

- [1] J. N. Elgin, T. B. O'Hare; *J. Phys. B: Atom. Molec. Phys.*, 1979, **12**, No. 1 (Jan), 159~168.
- [2] N. Tan-no *et al.*; *Phys. Rev.*, 1975, **A12**, No. 1 (Jul), 159~169.
- [3] R. M. Carman *et al.*; *Phys. Rev.*, 1970, **A2**, No. 1 (Jun), 60~72.
- [4] M. G. Raymer *et al.*; *Phys. Rev.*, 1979, **A19**, No. 6 (Jun), 2304~2316.
- [5] J. R. Hurray *et al.*; *Appl. Phys. Lett.*, 1978, **32**, No. 9 (May), 551~553.
- [6] I. P. Christoy, I. V. Tomoy; *Opt and Quant. Electron.*, 1985, **17**, No. 3 (May), 207~217.
- [7] A. Penzkofer *et al.*; *Prog. Quant. Electron.*, 1979, **6**, No. 2, 72.
- [8] R. Loudot; *Quantum theory of light*, (Clarendon Press, Oxford, 1978), 77.
- [9] A. 科尼;《原子光谱学和激光光谱学》, (科学出版社, 北京, 1984), 91.
- [10] *CRC Handbook of Chemistry and Physics*, (Robert C. Weast Ed. CRC Press Inc., Boca Raton, Florida, 1982), E-334, D-199.
- [11] Y. R. Shen; *The Principles of Nonlinear Optics*, (John Wiley & Sons, Inc., New York, 1984), 163.
- [12] D. Cotter, W. Zapka; *Opt. Commun.*, 1978, **26**, No. 2 (Aug), 251~255.
- [13] P. A. Borham *et al.*; *Sov. J. Quant. Electron.*, 1986, **16**, No. 9 (Sep), 1207~1214.
- [14] D. C. Hanna *et al.*; *Nonlinear Optics of Free Atom and Molecules*, (Spridgert-Verlag Berlin Heidelberg New York, 1979), 223.
- [15] H. Rigger; *IEEE J. Quant. Electron.*, 1986, **QE-22**, No. 2 (Mar), 405~410.

The gain factor and energy conversion efficiency quasi-stationary stimulated electronic Raman scattering with focused broad-band pump lasers

MO CHUNSHONG, LOU QIHONG AND WANG RUENWEN
(*Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Academia Sinica*)

(Received 9 November 1987; revised 5 October 1988)

Abstract

By using Raman-Maxwell-Bloch equations, we have calculated the gain factor and energy conversion efficiency of quasi-stationary stimulated electronic Raman scattering with focused broadband pump laser. The effects of laser pump depletion and saturation of Raman medium as well as the absorption of the medium to the pump beam are considered in the calculation. The results are agreement with the experimental results of XeCl excimer laser radiation in Ba vapour.

Key words: focused broad-band pump; stimulated electronic Raman scattering.