

CARS 技术中泵浦激光光场相干特性的研究

李润华 周达君 李庆行 符昌海

(中山大学激光与光谱学研究所

超快速激光光谱学重点实验室, 广州 510275)

提 要

本文从理论上指出,在分子振动能级的横向弛豫时间远小于激光相干时间的条件下,相干反斯托克斯喇曼散射(CARS)信号能够反映出激光光场的相干特性,据此可直接了解其相干时间并推算出激光的线宽.实验记录了苯、甲苯的CARS光信号与激光延时时间的关系,得出了激光的相干时间和线宽.

关键词 CARS, 高斯随机变量, 相关函数.

1 引 言

瞬态相干光谱实验既可以用皮秒激光来完成,也可以用纳秒宽频带激光来完成.已经证明,当用于激发样品的纳秒宽频带激光的相干时间很短时,用相干斯托克斯喇曼散射(CSRS)方法可以测量分子振动能级的横向弛豫时间,测量的时间分辨率决定于激光的相干时间而不是激光脉冲的时间宽度^[1].但是,当分子振动能级的横向弛豫时间 T_2 远小于激光的相干时间 τ_c ($T_2 \ll \tau_c$) 时,CSRS/CARS 信号实际上正比于激光的场强相关函数,这个相关函数反映出激光的相干性,因而由它能直接得到激光的相干时间并推算出线宽.

2 理 论

CARS 是由三阶非线性极化系数引起的光波与物质耦合过程.可以描述为:频率为 ω_{L1} 和 ω_s 的两束激光在喇曼介质中耦合出分子体系的相干振动,其振动频率为 $\omega_{L1} - \omega_s = \omega_R$, ω_R 为介质的喇曼模,这个相干振动激发然后同 ω_{L2} 的激光耦合,从而产生出相干辐射,其频率为 $\omega_{AS} = \omega_{L2} + \omega_{L1} - \omega_s = 2\omega_L - \omega_s$, 这里, $\omega_{L1} = \omega_{L2} = \omega_L$.

设 ω_{L2} 激光相对于 ω_{L1} 激光的延时为 τ , 在 $T_2 \ll \tau_c$ 的条件下,有^[2]:

$$I_{\text{CARS}}(\tau) \propto \int_{-\infty}^{\infty} E_L(t-\tau) E_L^*(t-\tau) E_L(t) E_L^*(t) E_s(t) E_s^*(t) dt \quad (1)$$

设 ω_s 激光的相干时间远大于实验的延时范围,这样就可以认为,在实验的延时范围内, ω_s 的激光是完全相干的,则该光场可以用 $E_s(t) = T_s(t) * C$ 来表示^[3],其中 $T_s(t)$ 为振幅项, $T_s^*(t)$ 表示脉冲的时间包络, C 为相位项,在此为常数.如果再忽略延时范围(ps量级)内它的强度变

化, (事实上, 其强度变化只会在 ns 量级的范围内调制信号, 而我们所关心的部分只在 ps 的量级, 所以其强度变化对最终的结果影响不大.) 这样上式可以简化为:

$$I_{\text{CARS}}(\tau) \propto \int_{-\infty}^{\infty} E_L(t-\tau)E_L^*(t-\tau)E_L(t)E_L^*(t)dt \quad (2)$$

此即 ω_L 激光的自相关函数. ω_L 的激光可以表示为^[3]:

$$E_L(t) = T(t)A(t) \quad (3)$$

式中 $A(t)$ 为一幅值恒定的、相位中间值为零、各态历经的高斯随机变量, $T^2(t)$ 为脉冲的时间包络. $A(t)$ 的归一化一阶自相关函数为:

$$\gamma(\tau) = \Gamma(\tau)/\Gamma(0) = [1/\Gamma(0)]\langle A(t)A^*(t-\tau) \rangle \quad (3)$$

式中 $\Gamma(0)$ 为 $A(t)$ 的自相关函数 $\Gamma(\tau)$ 的峰值. 根据高斯矩定理^[4]有:

$$\langle A^*(t)A(t)A^*(t-\tau)A(t-\tau) \rangle = \Gamma^2(0)[1 + |\gamma(\tau)|^2] \quad (4)$$

$$\therefore \int_{-\infty}^{\infty} E_L(t-\tau)E_L^*(t-\tau)E_L(t)E_L^*(t)dt = \left[\int T^2(t)T^2(t-\tau)dt / \int T^4(0)dt \right] * [1 + |\gamma(\tau)|^2] \quad (5)$$

另外, $\gamma(\tau)$ 与 $P(\omega)$ 互为傅里叶变换的关系, 可以表示为:

$$|\gamma(\tau)| = \int_{-\infty}^{\infty} P(\omega) \exp(-i\omega\tau) d\omega \quad (6)$$

这里, $P(\omega)$ 为 ω_L 的归一化功率谱密度函数.

(5)式中第一个因子为脉冲形状的相关函数, 第二个因子为相干峰, 其图像如图 1 所示, 大包络的半宽度 Δt 为激光脉冲的时间宽度, 它反映了激光脉冲强度的相关性; 相干峰的半宽度 $\Delta\tau_{1/2}$ 反映出激光的相干时间 τ_c , 这反映了激光光场振幅的相关性. 在完全锁模的超短光脉冲中, 这两者是一致的, 文献^[2]就是在这种前提下用 CARS 方法测得了超短激光脉冲的宽度.

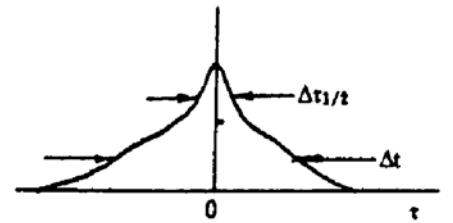


Fig. 1 Image of the correlation function

设激光的功率谱密度函数为高斯线型:

$$P(\omega) = [(4 \ln 2/\pi)^{1/2}/\Delta\omega] \exp[-4 \ln 2(\omega - \omega_0)^2/\Delta\omega^2] \quad (7)$$

式中 $\Delta\omega$ 为半宽度, ω_0 为中心频率. 则

$$|\gamma(\tau)| = \exp[-\tau^2/(16 \ln 2/\Delta\omega^2)] \quad (8)$$

$I_{\text{CARS}}(\tau)$ 中相干峰的半宽度为:

$$\Delta\tau_{1/2} = 4 \sqrt{2 \ln 2}/\Delta\omega \quad (9)$$

$$\therefore \Delta\nu = \Delta\omega/2\pi = (2 \sqrt{2 \ln 2}/\pi)(1/\Delta\tau_{1/2}) \quad (10)$$

又根据 Mandel 公式^[4]:

$$\tau_c = \int_{-\infty}^{\infty} |\gamma(\tau)|^2 d\tau = \sqrt{8 \ln 2\pi}/\Delta\omega \quad (11)$$

$$\tau_c = (\sqrt{\pi/4 \ln 2})\Delta\tau_{1/2} \quad (12)$$

因而由 (10), (12)式和相干峰的半宽度 $\Delta\tau_{1/2}$ 可以确定 τ_c 和 $\Delta\nu$.

3 实验和结果

实验用苯作为样品 (T_2 很短, 在 0.1~1 ps 的量级), 选其喇曼模 $\omega_R = 991 \text{ cm}^{-1}$, 由

Lambda Physik 公司的准分子激光器泵浦 LC620 (Sulforhodamin B) 染料得到 $\lambda_1 = 620 \text{ nm}$ 的红光, 同时泵浦 LC590 (Rhodamin 6G) 染料得到 $\lambda_2 = 584 \text{ nm}$ 的黄光, 黄光分为两束, 一束经过固定的延时线, 一束经过可变的延时线, 采用立体 CARS 光路配置^[5], 用 Boxcar 记录信号与延时时间的关系曲线, 为了得到不同相干时间的黄光, 实验中用纸片部分地挡住激光器中的光栅, 实验装置如图 2 所示, M_2, M_4, M_5 均可作两个方向的平移以调节 L_1 面上的光斑位置从而实现相位匹配。

实验中分别挡住激光器中的光栅使其有效部分为原来的 $1/4, 1/8, 1/16$, 在光栅常数一定时, 由于 $R = \lambda/\Delta\lambda = mN$, $\Delta\nu \propto R^{-1}$, 其中 m 为所用的衍射级次, N 为光栅被照射面内刻线的数目, 所以以这种方法大致可以使输出激光的线宽为全光栅时的 4 倍, 8 倍和 16 倍。(为了排除该激光器中光栅二次衍射的影响, 实验以全反镜挡住了二次衍射而使输出光路并未改变。)

所得的实验曲线如图 3 所示, 图中 $\Delta\nu_0$ 为全光栅照射时所输出的染料激光的线宽, 按高斯线

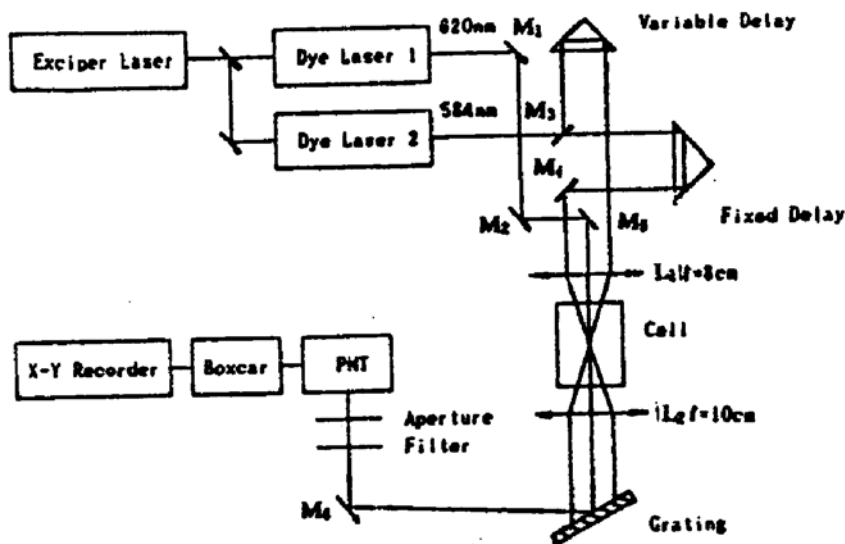
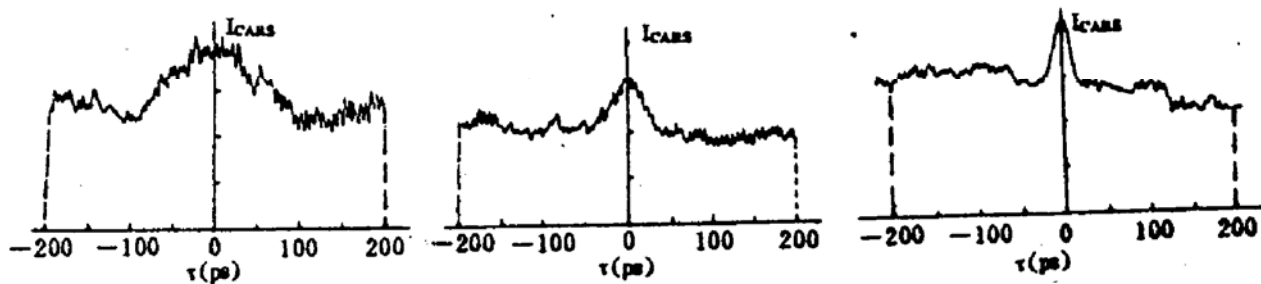


Fig. 2 Set-up of the experiment



(a). $\Delta\nu_1 = 4\Delta\nu_0$

(b). $\Delta\nu_2 = 8\Delta\nu_0$

(c). $\Delta\nu_3 = 16\Delta\nu_0$

Fig. 3 Results of the experiment

型计算出相干时间和线宽分别为：

$$\begin{aligned} \Delta\tau_{1/2} &\approx 111 \text{ ps} & \Delta\tau_{1/2} &\approx 50 \text{ ps} & \Delta\tau_{1/2} &\approx 23 \text{ ps} & \tau_{c1} &\approx 117.7 \text{ ps} & \tau_{c2} &\approx 53 \text{ ps} \\ \tau_{c3} &\approx 24.4 \text{ ps} & \Delta\nu_1 &\approx 5.6 \text{ GHz} & \Delta\nu_2 &\approx 11.8 \text{ GHz} & \Delta\nu_3 &\approx 27.1 \text{ GHz} \end{aligned}$$

实验所用激光器的 $\Delta\nu_0$ 的标称值为 0.18 cm^{-1} , 即 5.4 GHz , 由 $\Delta\nu_3$ 的结果反推的 $\Delta\nu_0 \approx 1.7 \text{ GHz}$, 与标称值有三倍左右的差别, 造成这一差别的原因之一在于所假设的函数线型, 因为如果当激光功率谱密度函数为不同线型时, (10) 式中的系数就会有一些差别, 而这一差别在大致判断激光的相干性的好坏时是可以容许的; 另外也可看到, 激光的实际线宽按比例改变时, 信号相干峰的宽度也基本上按相应比例而变化, 表明了这种估量的正确性。

作者也曾以甲苯为样品 (选 $\omega_k = 1004 \text{ cm}^{-1}$) 进行了同样的实验, 得到了相似的结果。

4 讨 论

由实验结果表明,当 ω_L 激光的实际线宽成比例改变时,信号相干峰的宽度不是严格按相应比例而变化,导致测得的结果不是严格按相应比例而变化. 作者认为这主要是来自于前面所作近似造成的,假定 ω_S 激光的相干时间远大于实验中的延时范围,但实际上在实验中 τ_{CS} 与 τ_{CL} 仅相差数倍,(这里, τ_{CS} 与 τ_{CL} 分别表示 ω_S 激光和 ω_L 激光的相干时间, ω_S 激光的线宽与 ω_L 激光全光栅时的线宽相同,也为 0.18 cm^{-1} , 即 5.4 GHz) ω_S 激光的非完全相干性会在某种程度上影响相干峰的宽度, τ_{CS} 相比于 τ_{CL} 越大,结果越接近真实值,关于这一点,将在后续的文章中作严格的数学推导以便能得出更为精确的结论.

参 考 文 献

- [1] Toshiaki Hattori, Akira Terasaki, Takayoshi Kobayashi, Coherent Stokes Raman Scattering with incoherent light for vibrational-dephasing time measurement. *Phys. Rev. (A)*, 1987, **35**(2): 715~724
- [2] 耿纪宏, 陈道阳, 李郁芬等, 利用 CARS 方法研究超短脉冲激光的脉冲宽度. *光学学报*, 1991, **11**(7): 607~611
- [3] H. A. Pike, M. Hercher, Basis for picosecond structure in mode-locked laser pulses. *J. Appl. Phys.*, 1970, **41**(11): 4562~4565
- [4] J. W. Goodman, *Statistical Optics*, New York, Wiley, 1985, 50~167
- [5] Alan C. Eckbreth BOXCARS; crossed-beam phase-matched CARS generation in gases. *Appl. Phys. Lett.*, 1978, **32**(7): 421~423

Study of the coherence of pumping light by CARS technique

Li Runhua Zhou Dajun Li Qinxing Fu Changhai
*(Institute of Laser and Laser Spectroscopy, Ultrafast Laser Spectroscopy Laboratory,
 Zhongshan University, Guangzhou, 510275)*

(Received 7 December 1992; revised 22 March 1993)

Abstract

In this paper, we propose theoretically that, if the transvers relaxation time of molecule's vibration is much shorter than the correlation time of pumping light, the correlation time and frequency width of the light can be estimated by CARS technique. The experiments of CARS of benzene and methylbenzene were performed and the correlation time and frequency width of laser were estimated.

Key words CARS, Gaussian random variable, correlation function.