

文章编号: 0253-2239(2006)07-1078-5

355 nm Nd:YAG 激光在 H₂ 中的高效 一级斯托克斯转换*

冷 静 花晓清 杨何平 沙国河** 张存浩

(中国科学院大连化学物理研究所 分子反应动力学国家重点实验室, 大连 116023)

摘要: 对脉冲 Nd:YAG 激光(355 nm)在 H₂ 和 H₂: He-Ar 混合气体中的受激拉曼散射(SRS)进行了研究。在 0.5 MPa 的氢气中,同时测量到从二级反斯托克斯到三级斯托克斯的多波长输出,其总转化效率达 88%;而高压下只剩下一级和二级斯托克斯输出,其中二级斯托克斯最大能量转化效率达 44%(对应量子效率为 63%)。由于高级斯托克斯的竞争,纯氢气中一级斯托克斯的最大能量转换效率不超过 43%。通过向 3 MPa 氢气中掺入 2 MPa Ar 气后,很好地抑制了二级斯托克斯的产生,从而获得了能量转换效率高达 71%(对应量子效率为 83%)的一级斯托克斯输出。对四波混频和级联受激拉曼散射在氢气多级斯托克斯产生中的作用以及惰性气体对它们的影响进行了讨论。

关键词: 非线性光学; 受激拉曼散射; 四波混频; 氢气; 惰性气体

中图分类号: O437 文献标识码: A

High-Efficiency First-Order Stokes Conversion in H₂ Pumped by a Nd:YAG Laser at 355 nm

Leng Jing Hua Xiaoqing Yang Heping Sha Guohe Zhang Cunhao

(State Key Laboratory of Molecular Reaction Dynamics, Dalian Institute of Chemical Physics,
The Chinese Academy of Sciences, Dalian 116023)

Abstract: Stimulated Raman scattering (SRS) in H₂ and H₂:He-Ar mixture gases pumped by a pulsed Nd:YAG laser at 355 nm was investigated. Under 0.5 MPa H₂, multi-wavelength output was simultaneously measured from the second-order anti-Stokes to the third-order Stokes, with a total conversion efficiency of 88%, while only the first- and the second-order Stokes output were obtained under high pressures, with a maximum energy conversion efficiency for the second-order Stokes as high as 44% (i. e., quantum efficiency of 63%). Due to the competitive suppression by high-order Stokes, the energy conversion efficiency for the first-order Stokes is no more than 43% in pure H₂. By adding 2 MPa Ar into 3 MPa H₂, the second-order Stokes was greatly suppressed and the first-order Stokes output reached an energy conversion efficiency as high as 71% (i. e., quantum efficiency of 83%). The effect of four-wave mixing (FWM) and cascade SRS on multi-order Stokes generation and the influence of inert gas were discussed.

Key words: nonlinear optics; stimulated Raman scattering; four-wave mixing; hydrogen; inert gas

1 引 言

受激拉曼散射(SRS)由于具有转换效率高、结构简单、成本低等优点,已成为扩展激光波长的一种重要方法,在海底通信、大气监测、环境检控、激光雷

达和光刻及数据存储等领域都有广泛的应用。氢气由于具有较大的拉曼增益系数,成为最常用的工作介质之一;现已报道了许多由可见-紫外波段激光抽运氢气受激拉曼散射的深入研究^[1~5],发现随着抽

* 国家 863 激光技术领域(2003AA822160)和中国科学院科研知识创新工程领域前沿项目(DICP K2000E4)资助课题。

作者简介: 冷 静(1979~),男,江西高安人,中国科学院大连化学物理研究所博士研究生,主要从事气体介质中的受激拉曼散射研究。

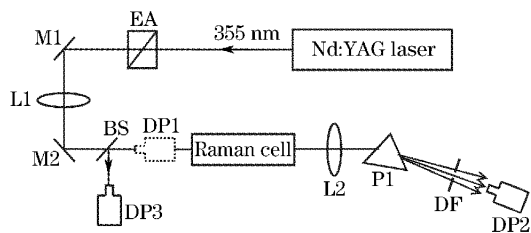
** 通信联系人。E-mail: ghsha@dicp.ac.cn

收稿日期: 2005-08-12; 收到修改稿日期: 2005-10-10

运能量或压力的增加,其一级斯托克斯(S_1)在达到其最大转换后会快速下降。这主要是因为 S_1 在达到一定强度后会通过四波混频(FWM)和级联受激拉曼散射等过程引起二级甚至更高级斯托克斯的产生,从而极大地限制了 S_1 可获得的转换效率^[2, 3]。因此控制氢气中高级斯托克斯的产生就成为提高其 S_1 转换效率的必然要求。往 H₂ 中加入惰性气体,可以在不改变活性气体分子数密度的同时改变四波混频效应和级联受激拉曼散射增益,从而可以影响各级斯托克斯的转换效率。本文使用脉冲三倍频 Nd:YAG 激光(355 nm)对氢气及其 He-Ar 混合气中的受激拉曼散射进行了实验研究,最终在 H₂:Ar 混合气体中获得了高效的一级斯托克斯转换。

2 实验装置

实验装置如图 1 所示。抽运源为 Continuum 公司的 PRII8000 型脉冲 Nd:YAG 激光的三倍频输出,激光脉宽约 7 ns,线宽 1 cm⁻¹,光束直径 9 mm,重复频率 10 Hz。拉曼池是一个可充高压的不锈钢管(长 185 cm,内径 26 mm),两端装有 10 mm 厚的石英窗口;聚焦透镜 L1 的焦距为 160 cm,焦点离拉曼池的入射窗口约 100 cm。双色分束片 BS 主要用来监视后向散射光,但在整个实验中它始终太弱而没有被测出,这主要是因为宽带激光抽运情况下后向受激拉曼散射增益系数要比前向受激拉曼散射的小得多,导致其在竞争过程中完全被抑制了^[6]。通过拉曼池的输出光束经透镜 L2 校准后被色散棱镜 P1 和光阑 DF 分开。入射抽运能量在拉曼池前 DP1 处进行测量;而输出光束分别在 DP2 处的相应位置进行测量,主要包括剩余抽运光、一级、二级和三级斯托克斯以及一级与二级反斯托克斯,分别记为 S_0 、 S_1 、 S_2 、 S_3 、 AS_1 、 AS_2 。本实验中所有的能量测量使用的都是同一个功率计(Molelectron 公司的 PM500A),它在可见



L1, L2: lens; EA: adjustable energy attenuator; P1: prism
M1, M2: 355 nm reflection mirror; DF: diaphragm
BS: dichroic beam-splitter; DP1-DP3: energy detection positions

图 1 受激拉曼散射实验装置

Fig. 1 Experimental setup of stimulated Raman scattering

和紫外波段有着相同的光谱响应。

3 实验结果与讨论

图 2 显示了 Nd:YAG 激光(355 nm)抽运的纯氢气中各级拉曼组分(包括 S_0 、 S_1 、 S_2 、 S_3 、 AS_1 和 AS_2)在三种不同压力条件下的能量转换效率随入射抽运能量的变化。在 0.5 MPa、1.5 MPa 和 3 MPa 氢气中, S_1 的阈值能量应分别稍低于 2.7 mJ、1.5 mJ 和 1.3 mJ,其转换效率在达到最大值后又都随抽运能量的增加而快速下降,并在高抽运能量下逐渐达到稳定。在 0.5 MPa 压力下,同时测量到了从二级反斯托克斯到三级斯托克斯的多波长输出,其能量分布约为:274 nm 占 1.9%,309 nm 占 4.4%,355 nm 占 11%,416 nm 占 16.8%,504 nm 占 27.6% 和 637 nm 占 11.8%。在 1.5 MPa 下,三级斯托克斯和反斯托克斯受到了抑制, S_2 获得了比较高效的转换,其能量转换效率高达 44%(对应量子效率为 63%);在 3 MPa 下, S_2 稍微下降, S_1 得到了增强,这时它们能量转换效率几乎相等,约为 30%。

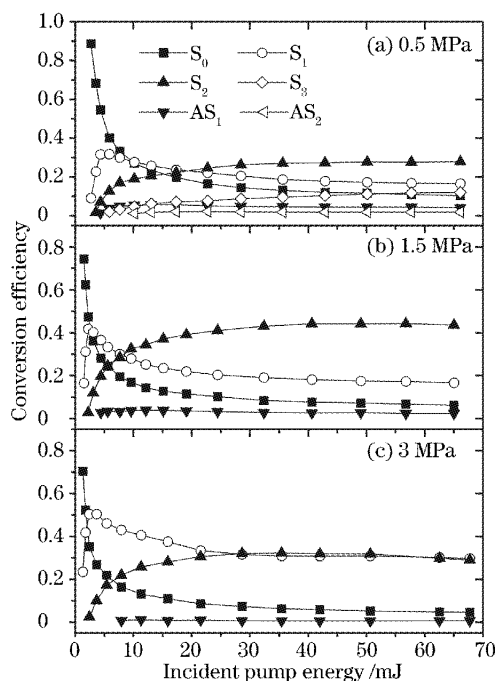


图 2 H₂ 中各级拉曼组分(S_0 、 S_1 、 S_2 、 S_3 、 AS_1 和 AS_2)在 (a) 0.5 MPa, (b) 1.5 MPa, (c) 3 MPa 三种压力下的能量转换效率随入射抽运能量的变化

Fig. 2 Energy conversion efficiency of various Stokes (S_0 、 S_1 、 S_2 、 S_3 、 AS_1 and AS_2) in H₂ as functions of incident pump energy, respectively under pressure (a) 0.5 MPa, (b) 1.5 MPa, (c) 3 MPa

图 3 显示了抽运能量为 46 mJ 时纯氢气中各级拉曼组分(包括 S_0, S_1, S_2, S_3, AS_1 和 AS_2)的能量转换效率随压力的变化。随着压力的增加, S_1 先是快速上升, 在 0.15 MPa 下获得最大转换; 然后突然快速下降, 并在 0.8 MPa 处降至最低; 之后又开始随压力稳步增加, 最终在 0.15~4 MPa 压力范围内形成一个很大的凹陷。正是在这个凹陷区域内, S_2 和 S_3 转换效率反而凸起成山峰形状; 并分别在 1.4 MPa 和 0.5 MPa 下获得最大转换, 其能量转换效率分别为 44% 和 11%。这表明 S_1 在 0.15~4 MPa 压力范围内的凹陷就是由于高级斯托克斯(高压下主要是 S_2) 的竞争所引起的。注意图中 S_0 的变化, 发现当压力为 0.5 MPa 时, 剩余抽运光比率约为 12%, 然后随着压力的进一步增加而缓慢减少, 表明当压力大于 0.5 MPa 后, 抽运能量利用率(即消耗掉的抽运能量与入射抽运能量的比率)一直大于 88%。然而由于高级斯托克斯的竞争, 特别是高压下 S_2 对 S_1 的直接消耗, 导致 S_1 在整个压力范围内的最大能量转换效率不超过 43%。

图 3 中 S_2 和 S_3 与压力的关系似乎与氢气受激拉曼散射增益系数随压力增加而增加的规律相矛盾^[2,7], 这主要是因为它们的产生还与四波混频有关。一般来说, 一级斯托克斯由受激拉曼散射产生, 反斯托克斯由四波混频产生, 而高级斯托克斯则可通过级联受激拉曼散射或者其与四波混频的协同作用来产生^[8]。在低压下, 由于波矢失配比较小, 四波混频效应比较强, 这时高级斯托克斯的产生主要是四波混频与级联受激拉曼散射协同作用的结果; 即四波混频为受激拉曼散射提供种子光, 然后通过级联受激拉曼散射的放大来获得比较高的转换效率。我们在实验中观察到低压下 S_2 和 S_3 光斑呈现出清晰的环形结构, 这是由于四波混频过程需要满足相位匹配条件的结

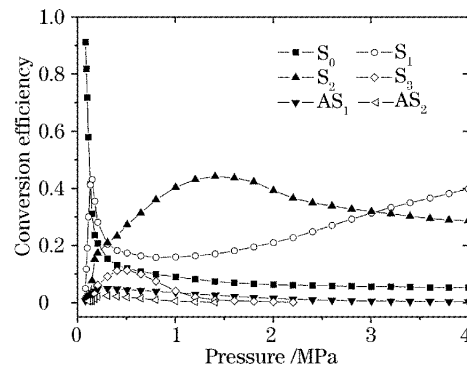


图 3 H_2 中各级拉曼组分(S_0, S_1, S_2, S_3, AS_1 和 AS_2)在入射抽运能量为 46 mJ 时的能量转换效率随气体压力的变化

Fig. 3 Energy conversion efficiencies of various Stokes (S_0, S_1, S_2, S_3, AS_1 and AS_2) in H_2 as functions of gas pressure for a pump energy of 46 mJ

果^[9]。不过随着压力的增加, 波矢失配加大, 四波混频效应在超过某个最佳压力后会显著减弱, 从而导致 S_2 和 S_3 转换效率呈现出山峰形的压力依赖性^[8]。在更高压力下, 由于波矢失配太大, 四波混频几乎没有作用; 这时 S_2 主要是由 S_1 通过级联受激拉曼散射来产生的, 但从 S_2 级联产生 S_3 已达不到阈值, 故这时 S_3 消失了。

四波混频和级联受激拉曼散射在各级斯托克斯产生中的作用还可从它们的脉冲波形中观察到。图 4 显示了抽运能量为 46 mJ 时两个不同压力下测量到的各级斯托克斯的脉冲波形。注意 0.5 MPa 下的 S_1 和 AS_1 , 由于 S_1 是通过受激拉曼散射产生的, 它存在一个阈值, 导致 S_1 要比 S_0 延迟一点; 而 AS_1 是由四波混频产生的, 故它不需要阈值, 且其波形还与 S_1 相似。比较图 4(a) 和图 4(b) 中 S_2 的产生时刻, 发现 0.5 MPa 下 S_2 的产生几乎与 S_1 同步, 延迟很少; 而 3 MPa 下 S_1 的功率虽然要比 0.5 MPa 下的大, 但其

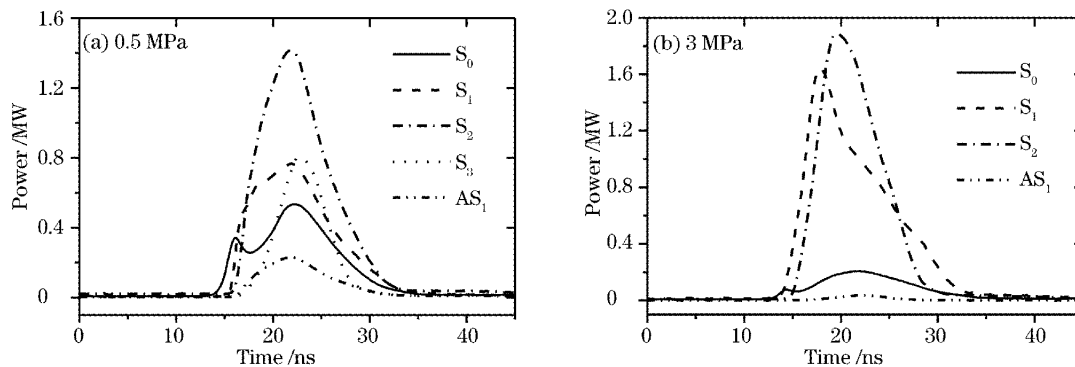


图 4 实验测量的 H_2 中各级拉曼组分(S_0, S_1, S_2, S_3 和 AS_1)的脉冲波形

Fig. 4 Measured waveforms for various Raman components (S_0, S_1, S_2, S_3 and AS_1)

S₂ 的产生时刻与 S₁ 相比却要延迟不少。这是因为高压下 S₂ 主要是通过级联受激拉曼散射来产生的, 只有当 S₁ 超过一定阈值时 S₂ 才能产生; 而低压下四波混频效应比较强, 可大大降低甚至消除 S₂ 产生所需的阈值。此外, 四波混频的作用还可以从 S₂ 波形上看出来: 虽然 0.5 MPa 下 S₂ 的功率比 3 MPa 下的小, 但 S₂ 却获得了比较高效的转换, 而 3 MPa 下它反而消失不见。

上述实验表明, 由于高级斯托克斯的竞争, 特别是高压下 S₂ 对 S₁ 的直接消耗, 严重限制了纯 H₂ 中 S₁ 所能获得的转换效率。因此要想提高 S₁ 转换效率, 就必须抑制高级斯托克斯的产生; 向氢气中掺入惰性气体可以增加四波混频的波矢失配和降低级联

受激拉曼散射增益, 从而可抑制高级斯托克斯的产生。通过向 3 MPa 氢气中分别掺入 2 MPa 的氦气和氩气, 并保持该混合比不变而改变气体总压来进行实验。图 5 给出了当 $P(\text{H}_2):P[\text{He}(\text{Ar})]=3:2$ 和抽运能量为 46 mJ 时这两种混合气中 S₁ 和 S₂ 的能量转换效率随氢气分压的变化。为了方便比较, 图中也画出了纯氢气中的相关数据。从图中可以看出: 氦气和氩气的加入都增加了高压下 S₁ 的转换效率, 同时也相应地减少了 S₂ 的转换效率。其中氦气作用比较小, 而氩气作用却很明显; 在 3 MPa 氢气分压下, 加入 2 MPa 氩气可以使 S₁ 能量转换效率达到 71% (即量子效率为 83%)。

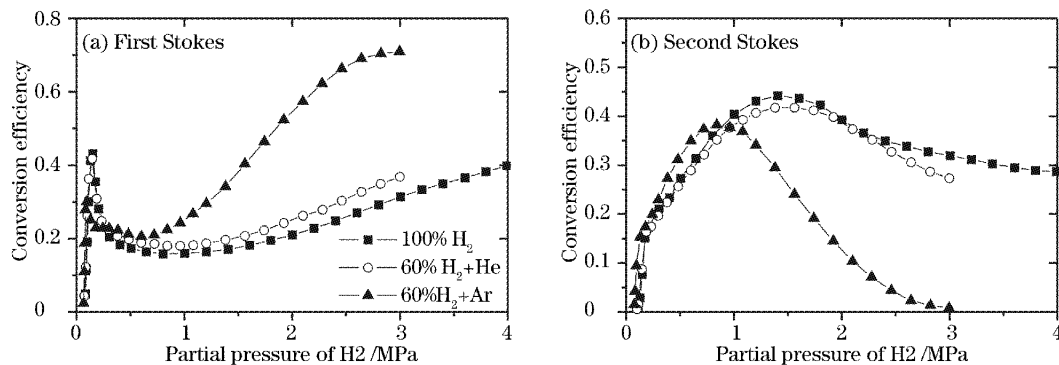


图 5 入射抽运能量为 46 mJ 时 S₁ 和 S₂ 在纯 H₂ 和 H₂:He-Ar 混合物中的能量转换效率随 H₂ 分压的变化

Fig. 5 Energy conversion efficiency for the first-order Stokes (a) and the second-order Stokes (b) in H₂, H₂:He and H₂:Ar mixtures as functions of H₂ partial pressure for a pump energy of 46 mJ

对于氦气和氩气的这种差异, 可以从它们的影响机制上得到解释。惰性气体的加入对氢气中多级斯托克斯转换主要有三个影响: 1) 可以增加混合气体的折射率而加大四波混频的波矢失配, 从而抑制四波混频; 2) 可以在不改变拉曼活性气体分子数密度的同时增加拉曼线宽, 导致受激拉曼散射增益系数减小^[2]; 3) 可以减小混合气体的热扩散系数从而加大受激拉曼散射中热散焦效应引起的光束发散来降低受激拉曼散射增益^[8]。混合气体拉曼线宽可近似表示为^[2]: $\Delta\nu = \Delta\nu_0 + \gamma P_b$, 其中 $\Delta\nu_0$ 为氢气自加宽线宽, γ 和 P_b 分别为惰性气体加宽系数及其分压。表 1 列出了氢气、氦气和氩气的光学色散参量 r ($r = n_0 - 1$, n_0 为 1 标准大气压下的折射率) 以及它们的加宽系数和热扩散系数。由于波矢失配正比于气体的光学色散参量 r , 所以从表中数据可以看出, 氩气对四波混频的影响要明显大于氦气。而在高压下, 四波混频作用可以忽略, 这时惰性气体主要是通过两个因素来降低受激拉曼散射增益。从表 1 中

数据还可以看出: 氩气的加宽系数比氦气大的多, 且其热扩散系数 κ 远小于氢气, 而氦气的 κ 值却与氢气相差不多; 故加入氩气可以显著降低氢气中受激拉曼散射增益, 从而抑制 S₂ 产生并提高 S₁ 转换效率, 而加入氦气却收效不大。

表 1 H₂, He 和 Ar 在对应 355 nm 处的光学色散参量 r 和它们的加宽系数 γ 以及热扩散系数 κ

Table 1 The optical dispersion parameter, r at 355 nm, the broadening coefficient γ and the thermal diffusivity κ for H₂, He and Ar

	$r^{[10]}/10^{-6}$	$\gamma^{[2]}/(\text{cm}^{-1}/\text{atm})$	$\kappa^{[11]}/[\text{W}/(\text{m} \cdot \text{K})]$
H ₂	145	—	18.3×10^{-2}
He	35	1.58×10^{-3}	15.1×10^{-2}
Ar	290	5.3×10^{-3}	1.77×10^{-2}

4 结 论

本文用脉冲三倍频 Nd:YAG 激光对 H₂ 及其 He-Ar 混合气中的受激拉曼散射进行了研究。在 0.5 MPa 氢气中, 获得了从二级反斯托克斯到三级

斯托克斯的多波长同时输出,其能量分布约为: 274 nm 占 1.9%, 309 nm 占 4.4%, 355 nm 占 11%, 416 nm 占 16.8%, 504 nm 占 27.6% 和 637 nm 占 11.8%; 而高压下主要剩下一级和二级斯托克斯输出。在纯氢气中,由于高级斯托克斯(高压下主要是二级斯托克斯)的竞争,其一级斯托克斯的最高能量转换效率不超过 43%。通过向 3 MPa 氢气中掺入 2 MPa 氩气后,很好地抑制了二级斯托克斯的产生,从而获得了能量转换效率高达 71%(即量子效率为 83%)的一级斯托克斯输出。

参 考 文 献

- 1 K. Sentrayan, A. Michael, V. Kushawaha. Design of a compact blue-green stimulated hydrogen Raman shifter[J]. *Appl. Phys. B*, 1996, **62**(5): 479~483
- 2 L. de Schouepnikoff, V. Mitev, V. 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 A. D. Papayannis, G. N. Tsirikas, A. A. Serafetinides. Generation of UV and VIS laser light by stimulated Raman scattering in H₂, D₂, and H₂/He using a pulsed Nd: YAG laser at 355 nm[J]. *Appl. Phys. B*, 1998, **67**(5): 563~568
- 4 Lou Qihong, Xu Jianqiu, Dong Jingxing *et al.*. Superbroadband Raman compression in Hydrogen[J]. *Chin. J. Lasers*, 2000, **A27**(1): 64~68 (in Chinese)
楼祺洪,徐剑秋,董景星等. 氢气中的超宽带拉曼脉冲压缩[J]. *中国激光*, 2000, **A27**(1): 64~68
- 5 Zhu Xiaozheng, Lou qihong, Ye Zhenhuan *et al.*. Experimental investigation of stimulated Raman scattering in H₂ pumped by the third harmonic solid-state laser at 355 nm[J]. *Chin. J. Lasers*, 2003, **30**(9): 819~822 (in Chinese)
朱晓峥,楼祺洪,叶震寰等. 固体三倍频激光在高压 H₂ 中受激拉曼散射的实验研究[J]. *中国激光*, 2003, **30**(9): 819~822
- 6 Leng Jing, Sha Guohe, Hua Xiaoqing *et al.*. Stimulated Raman and Brillouin scattering in oxygen pumped by a Nd: YAG laser at 355 nm[J]. *Acta Optica Sinica*, 2005, **25**(8): 1105~1110 (in Chinese)
冷 静,沙国河,花晓清等. 三倍频 Nd: YAG 激光抽运氧气中的受激拉曼和布里渊散射[J]. *光学学报*, 2005, **25**(8): 1105~1110
- 7 Z. Chu, U. N. Singh, T. D. Wilkerson. Multiple Stokes wavelength generation in H₂, D₂, and CH₄ for lidar aerosol measurements[J]. *Appl. Opt.*, 1991, **30**(30): 4350~4357
- 8 Leng Jing, Sha Guohe, Yang Heping *et al.*. Efficient multi-wavelength Raman conversion in methane pumped by pulsed laser at 355 nm[J]. *High Power Laser and Particle Beams*, 2005, **17**(7): 987~994 (in Chinese)
冷 静,沙国河,杨何平等. 355 nm 脉冲激光在甲烷中的高效多波长拉曼转换[J]. *强激光与粒子束*, 2005, **17**(7): 987~994
- 9 G. C. Bjorklund. Effects of focusing on third-order nonlinear processes in isotropic media [J]. *IEEE J Quant. Electron.*, 1975, **11**(6): 287~296
- 10 J. Bartels, H. Borchers, H. Hausen *et al.*. *Landolt-Bornstein Zahlenwert und Funktionen* [M]. Berlin: Springer-Verlag, 1962. 871~889
- 11 Shi Jun, Wang Jiading, Yu Guocong *et al.*. *Chemical Engineering Handbook* [M]. Beijing: Chemical Industry Press, 1996. 141~145 (in Chinese)
时 钧,汪家鼎,余国琮等. *化学工程手册*[M]. 北京: 化学工业出版社, 1996. 141~145