

H₂、D₂及 H₂/D₂混合气体受激拉曼特性研究

曹开法 黄 见 胡顺星

中国科学院安徽光学精密机械研究所中国科学院大气成分与光学重点实验室, 安徽 合肥 230031

摘要 受激拉曼散射是扩展激光波长的重要方法,但是气体中非线性光学过程对受激拉曼光的影响非常复杂,实验研究受激拉曼光与气体气压及拉曼池耦合透镜焦距的关系是实际应用受激拉曼光的重要手段。设计了受激拉曼实验装置及其测量系统,采用Nd:YAG激光器的四倍频激光266 nm作为抽运源,活性气体(H₂、D₂及 H₂/D₂混合气体)分别被密封在长为100 cm的拉曼管中,输出的拉曼激光由棱镜分光后用能量计采集保存用以研究拉曼散射特性。给出了H₂、D₂及 H₂/D₂混合气体的各级Stokes和反Stokes受激拉曼激光能量与气体气压及透镜焦距的关系。获得了217.84~447.15 nm之间的12条激光谱线,有效地扩展了拉曼激光的应用范围。研究结果对气体受激拉曼光的实际应用具有十分重要的价值。

关键词 散射;受激拉曼散射;四波混频;氘气;氢气;激光雷达

中图分类号 TN248 **文献标识码** A

doi: 10.3788/AOS201535.0319001

Investigation of Stimulated Raman Scattering Characteristics in D₂, H₂ and D₂/H₂ Mixtures

Cao Kaifa Huang Jian Hu Shunxing

Key Laboratory of Atmospheric Composition and Optical Radiation, Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Hefei, Anhui 230031, China

Abstract The stimulated Raman scattering (SRS) is an important method to extend the laser wavelength range. Nonlinear optical processes in gas have complex impacts on SRS laser, so it is important to make an experimental study on the relationship between the characteristic of SRS laser and gas pressure and focal length of lens for applications of SRS laser. The SRS experimental device and measurement system are introduced. Its pump source is a pulsed Nd:YAG laser at 266 nm, and active gases (H₂ and D₂, H₂/D₂ mixtures) are sealed in the 100 cm long Raman cell. The outgoing SRS laser split by a prism is measured by an energy meter for the study of SRS characteristics of the active gases. The relationship between the energy of outgoing Stokes and anti-Stokes SRS laser in the H₂, D₂ and H₂/D₂ mixtures and gas pressure and focal length of lens is presented. The laser of 12 wavelength bands from 217.84 nm to 447.15 nm are obtained, which effectively expand the scope of the application of Raman laser. The research results have very important practical application value for the use of gas SRS laser.

Key words scattering; stimulated Raman scattering; four-wave mixing; D₂; H₂; laser lidar

OCIS codes 190.5650; 190.5890; 230.4320

1 引 言

扩展激光的波长范围的研究对于提高激光的应用范围十分重要,目前采用的方法有倍频、混频、受激拉曼散射等多种非线性光学技术^[1-3]。高压气体的受激拉曼散射由于转换效率高、频率稳定和运用简便等优点受到国内外研究者的重视^[4-5],但大部分侧重于一种气体^[6]或者配比缓冲气体在不同气压下的受激拉曼特性研究,对于多焦距^[7]以及多拉曼气体混合气体^[8]的受激拉曼特性研究却很少。混合气体的受激拉曼技术可以

收稿日期: 2014-08-18; 收到修改稿日期: 2014-10-12

基金项目: 国家自然科学基金(41205020, 41127901)

作者简介: 曹开法(1982—),男,博士,副研究员,主要从事激光雷达方面的研究。E-mail: kfciao@aiofm.ac.cn

使同一光路上产生更多的受激拉曼波长,对于紫外差分吸收激光雷达的测量非常重要,可以有效避免几何因子对测量造成的影响^[9]。高压气体一般被封装在拉曼管中,拉曼管两端封有厚度为7~10 mm的石英平面镜或者透镜。抽运激光脉冲能量的大小、光斑模式、拉曼池输入输出耦合透镜的焦距、气体压强等都会影响到输出散射光的特性。根据非线性光学原理,高压气体中除了存在受激拉曼散射(SRS)过程,还存在复杂的四波混频(FWM)、受激布里渊散射(SBS)以及光学击穿等过程^[10],这些过程的存在都直接影响各级受激拉曼散射光的能量分配和光束质量。同时H₂和D₂的受激拉曼光波长非常符合臭氧差分吸收激光雷达的波长需求^[11]。本文通过实验研究了H₂、D₂以及H₂/D₂混合气体中各级受激拉曼激光的转换效率与气体气压和透镜焦距的关系,为受激拉曼光的实际应用提供了十分重要的研究数据。

2 气体中非线性效应原理

活性气体满足阈值条件时^[12],平面波的稳态拉曼增益系数 g_{p1} 可以表示为^[5,13]

$$g_{p1} = \frac{2(\lambda_1^s)^2 N k_B A (\nu_1^s)^4}{h c \nu_1^s \pi c \Delta \nu (\nu_1^s - \nu_p^s)}, \quad (1)$$

式中 N 为拉曼活性分子数密度, k_B 为玻尔兹曼因子, h 为普朗克常量, c 为光速(cm/s), λ_1^s 和 ν_1^s 是一级 Stokes 拉曼光波长和波数, $\Delta \nu$ 为拉曼光的线宽, A 和 ν_1^s 为与气体种类有关的常数, ν_p 为抽运激光的波数,部分参数如表 1 所示。拉曼谱线的线宽 $\Delta \nu$ 是活性气体压强 P 的函数^[5,13]:

$$\begin{aligned} \Delta \nu_{\text{CH}_4} &= 320 + 12P_{\text{CH}_4}, \\ \Delta \nu_{\text{D}_2} &= 3.58P_{\text{D}_2} + 3.67/P_{\text{D}_2}, \\ \Delta \nu_{\text{H}_2} &= 1.58P_{\text{H}_2} + 11.2/P_{\text{H}_2}. \end{aligned} \quad (2)$$

表 1 拉曼增益计算中参数的数值^[6]

Table 1 Value of parameters in the calculation of Raman gain coefficient^[6]

Gas	Raman shift /cm ⁻¹	k_B	$A / (10^{-28} \text{ cm}^2/\text{sr})$	$\nu_1 / (10^{-4} \text{ cm}^{-1})$
CH ₄	2917	1	10.4	7.23
D ₂	2987	0.38	3.90	7.81
H ₂	4155	0.66	8.74	8.48

图 1 为平面波稳态情况下受激拉曼增益系数随气体压强的变化规律,可以看出,氙气和氢气的一级 Stokes 光增益系数在低压区随着气压的上升迅速增大,当氙气的气压达到 10 atm (1 atm=1.01×10⁵ Pa) 时,氙气的增益系数已经基本饱和。当氢气的气压达到 20 atm 时,氢气的增益系数已经基本饱和。而对于甲烷气体,在计算的 0~30 atm 范围内,其增益系数一直随气压的上升而增大,还没有出现饱和现象。活性气体中发生的拉曼过程不能被简单的看作准稳态受激拉曼散射过程,而应该认为是瞬态受激拉曼散射过程。考虑瞬态受激拉曼散射过程,要在准稳态受激拉曼散射过程基础上乘以一个衰减因子,衰减因子 R 可以表示为^[6,13]

$$R = \frac{1}{\sqrt{G}} \left(\sqrt{T_p \Delta \nu} - \frac{1}{4\sqrt{G}} \right), \quad (3)$$

式中 T_p 是抽运光源的脉冲宽度, G 称为放大因子。在单程增益拉曼管中,瞬态效应被认为主要是由拉曼光束的高放大率造成的,而与抽运线宽无关。对于的拉曼系统一般取 $G=25$ 或 30 为稳态阈值^[6],而现在使用的 Nd:YAG 激光器的激光脉冲宽度一般为 5 ns。图 2 给出了三种气体瞬态受激拉曼增益系数随气压的变化关系。在瞬态拉曼增益过程中,由于受衰减因子的影响,三者均没有出现饱和现象,增益系数一直随气压的上升而增大。输出的一阶受激拉曼光的强度 I_s 可表示为^[14]

$$I_s = I_s(0) \exp(Rg_{p1} I_p l), \quad (4)$$

式中 $I_s(0)$ 为初始 Stokes 光强度,它可由自发辐射拉曼信号产生, I_p 为输入的抽运光强度, l 取激光光束共焦参数 b 的 2 倍, b 是与聚焦系统相关的参数^[10],

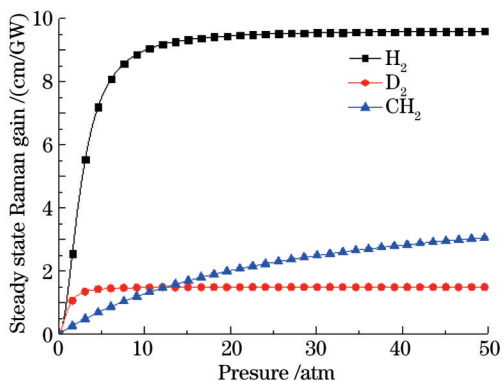


图1 氘气、氢气和甲烷的稳态受激拉曼增益系数

Fig.1 Steady state stimulated Raman gain coefficient of D₂,H₂ and CH₄

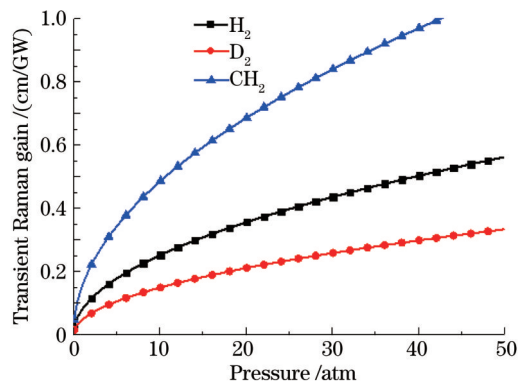


图2 氘气、氢气和甲烷的瞬态受激拉曼增益系数

Fig.2 Transient stimulated Raman gain coefficient of D₂,H₂ and CH₄

$$b = \frac{\lambda_1^8 f^2 M^2}{\pi \omega_1^2} \quad (5)$$

其中, f 是拉曼聚焦系统入射透镜的焦距, M 是激光的光束质量, ω_1 是激光在入射透镜处的光斑半径。可以看出, 受激拉曼过程中拉曼光强度与气体气压和聚焦系统入射透镜的焦距有关。

四波混频过程也是气体中一个重要的三阶非线性过程。通过四波混频过程可产生二阶、三阶等高阶 Stokes 光和反 Stokes 光。产生二阶 Stokes 光的典型过程的转换效率 E_{s_2} 可表示为^[5]

$$E_{s_2} = Bp^2 \exp(-b|\Delta k|), \quad (6)$$

式中 B 为与压强无关, 与介质的非线性参数、聚焦参数以及波矢有关的参数^[5], p 是介质气体压强, Δk 为由于介质色散引起的波矢失配量(与气体气压正相关)。FWM 过程要消耗一阶 Stokes 光来产生二阶 Stokes 光, FWM 过程是没有阈值条件的, 但输出能量大小主要由波矢失配决定。在入射的抽运光能量一定的情况下, 改变气体的压强和聚焦透镜的焦距就可以调控 E_{s_2} 的相对大小。因此气体的压强和透镜焦距作为实验研究拉曼效应的变化参数。

3 受激拉曼实验装置和测量系统

用于研究受激拉曼的实验装置和测量系统如图3所示。抽运激光源是美国 Continuum 公司的 Surelite II-20 型 Nd:YAG 激光器。该激光器发射的基频光波长为 1064 nm, 脉冲能量为 200 mJ, 脉冲频率为 20 Hz。激光器内部有倍频装置, 倍频器中包含了两块非线性晶体, 封装在密封的温度控制盒内。经两块倍频器后激光波长转化为 266 nm。通过激光反射镜把 266 nm 激光反射到光路上, 532 nm 和 1064 nm 激光透射出去。266 nm 的激光经入射透镜聚焦到装有活性气体的拉曼管中。拉曼管是由不锈钢材料加工而成, 内径为 14 mm, 长度为 1 m, 两端封有厚度为 10 mm 的石英平面镜。激光与拉曼介质产生非线性的受激拉曼散射, 产生多波长激光光束, 输出激光含有各级受激拉曼光以及剩余的抽运光。输出激光通过透镜耦合准直后用光学棱镜分光, 最后

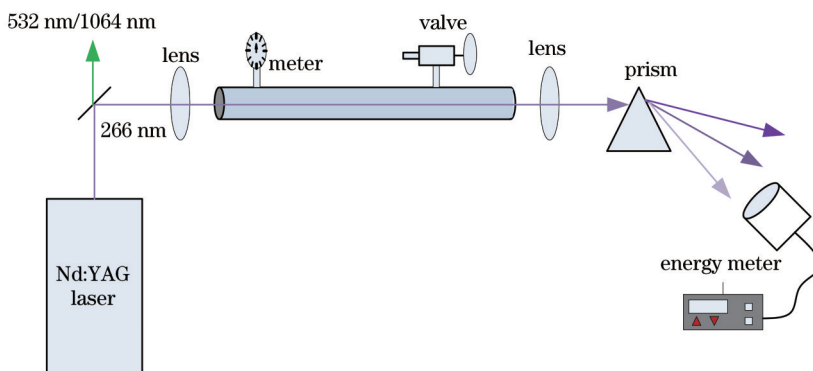


图3 受激拉曼散射试验装置图

Fig.3 Experimental setup of the stimulated Raman scattering experiment

用EM500型能量计测量各级拉曼激光的能量。实验中拉曼管中充有不同气压的氘气、氢气或者氘气和氢气的混合气体,并且聚焦透镜的焦距变化范围是30~80 cm。根据计算机采集的脉冲能量,考虑各光学元器件导致的反射、吸收损失(包括拉曼池窗口、透镜以及三棱镜),即可得出散射光的转化效率和稳定性。

在受激拉曼散射实验中,设定的抽运激光波长为266 nm,出射能量为20 mJ,脉冲宽度为5 ns,重复频率为20 Hz。聚焦透镜的焦距为30~80 cm,氢气气压为1~30 atm,氘气气压为1~12 atm。各级受激拉曼光的波长如表2所示,S表示Stokes拉曼光,AS表示反Stokes拉曼光,其后的数字表示级数。

表2 H₂和D₂中由266 nm激光脉冲抽运的受激拉曼光的波长分布^[5]

Table 2 Wavelengths available of SRS laser in H₂ and D₂ pumped by a pulsed laser at 266 nm^[5]

Hydrogen (4159 cm ⁻¹) vibrational transition	Deuterium (2986 cm ⁻¹) vibrational transition
Pump laser: 266 nm	Pump laser: 266 nm
AS2: 217.84 nm	AS2: 229.48 nm
AS1: 239.5 nm	AS1: 246.4 nm
S1: 299 nm	S1: 288.9 nm
S2: 341.6 nm	S2: 316.2 nm
S3: 397.94 nm	S3: 349.39 nm
S4: 447.15 nm	S4: 389.86 nm

4 实验结果和分析

根据理论分析可以从氘气的受激拉曼增益和四波混频与氘气气压的关系中看出,拉曼增益随气压升高增长不大,同时氘气的波矢失配量较小。这些说明,增大气压,由抽运激光通过受激拉曼过程产生的一阶受激拉曼光会缓慢增加,同时通过四波混频过程会有大量的一阶受激拉曼光和抽运光转换为二阶受激拉曼光。因此氘气的一阶受激拉曼光的转换效率最高处应该在低压区。图4为透镜焦距分别为80、60、50、40、30 cm时各级受激拉曼光与氘气气压的关系图,PO为剩余的抽运光。可以看出,氘气受激拉曼过程中产生了多级的Stokes和反Stokes拉曼光。在透镜焦距为80 cm和60 cm条件下,受激拉曼过程产生的,4阶Stokes拉

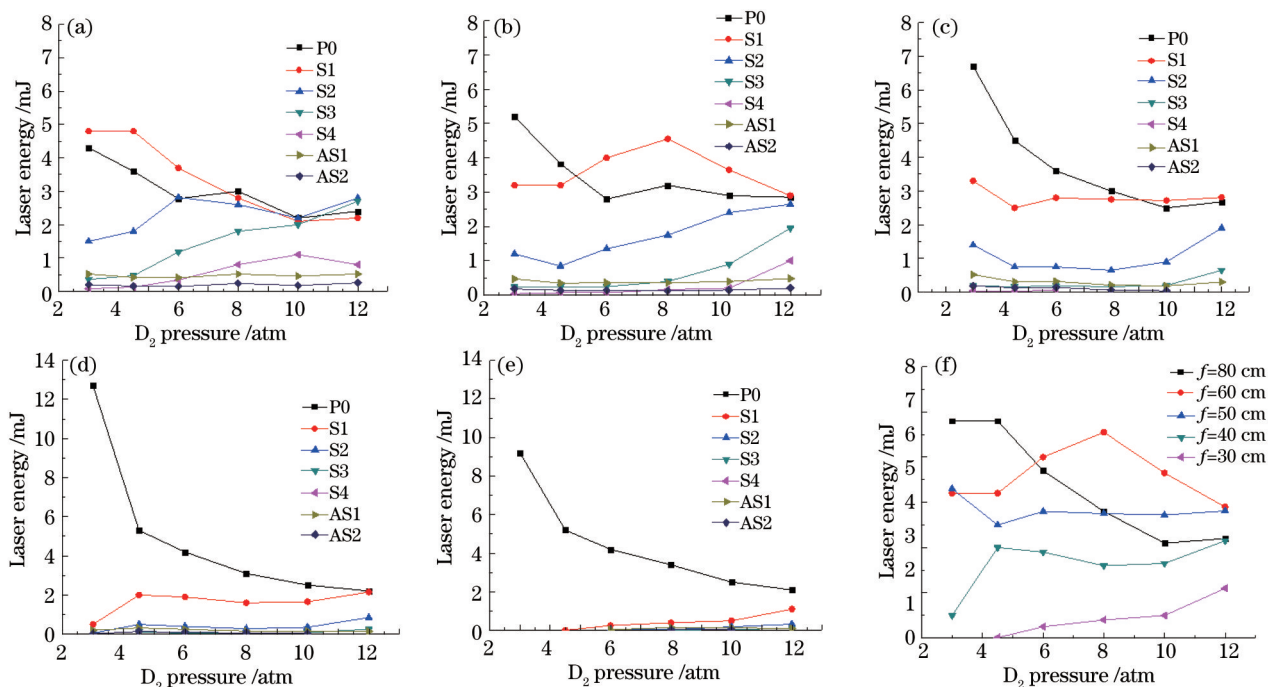


图4 不同焦距条件下氘气受激拉曼光能量与气压的关系图。(a) f=80 cm; (b) f=60 cm; (c) f=50 cm; (d) f=40 cm; (e) f=30 cm; (f)一级Stokes拉曼光能量

Fig.4 Pressure dependence of SRS laser energy in D₂ at different focal lengths. (a) f=80 cm; (b) f=60 cm; (c) f=50 cm; (d) f=40 cm; (e) f=30 cm; (f) first-Stokes laser energy

曼光的能量也不小。而产生的反 Stokes 拉曼光的能量较小,随气压的变化关系不大。随着氖气气压的增加,剩余的抽运光能量逐渐减小,说明受激拉曼过程和四波混频过程高压时消耗的抽运光较多。这个结果说明高压拉曼管中氖气受激拉曼过程和四波混频过程有较多能量转换为高阶 Stokes 拉曼光。而在透镜焦距较小的条件下,高阶正反 Stokes 拉曼光较难产生。这是由于透镜焦距越短,气体波矢失配增加,降低了四波混频过程中高阶拉曼光产生效率。透镜焦距为 30 cm 和 40 cm 时,一级受激拉曼光能量较低。透镜焦距为 50 cm 时,氖气的一级受激拉曼光与气压的关系不大。透镜焦距为 60 cm 时,氖气的一级受激拉曼光在 8 atm 时能量最大。透镜焦距为 80 cm 时,氖气的一级受激拉曼光在 4 atm 时能量最大。从图 4 中可以看出,焦距较短时总的能量转化效率较低,焦距较长时总的能量转化效率较高。

图 5 为透镜焦距分别为 80、60、50、40、30 cm 时各级受激拉曼光与氢气气压的关系图。相对于氖气,氢气的二级反 Stokes 拉曼光和四级 Stokes 拉曼光很少产生。可以看出:1)一级反 Stokes 拉曼光的能量较小,随气压的增加而逐渐减小;2)随着氢气气压的增加,剩余的抽运光能量逐渐减小,说明受激拉曼过程和四波混频过程高压时消耗的抽运光较多;3)长焦下一级 Stokes 拉曼光能量随着氢气气压的增加而逐渐增加,短焦下一级 Stokes 拉曼光能量随着氢气气压的增加而逐渐减小;4)二级 Stokes 拉曼光能量随着氢气气压的增加而增加。从图 5 中可以看出焦距为 30~80 cm 时,氢气的一级受激拉曼光能量与气压的变化关系在不同焦距下比较类似。随着气压的增加,氢气的一级受激拉曼光能量先减小后增加。在低气压下,透镜焦距为 40 cm 和 50 cm 时一级受激拉曼光能量较大。在高压下,透镜焦距为 80 cm 时一级受激拉曼光能量较大。从图 5(f) 中可以看到焦距较短时总的能量转化效率较低,焦距较长时总的能量转化效率较高。这说明焦距较短时发生了严重的光学击穿现象,大量的激光能量转换成了热能。在焦距为 30~80 cm 时,总的能量转换效率随气压的增加变化不大。

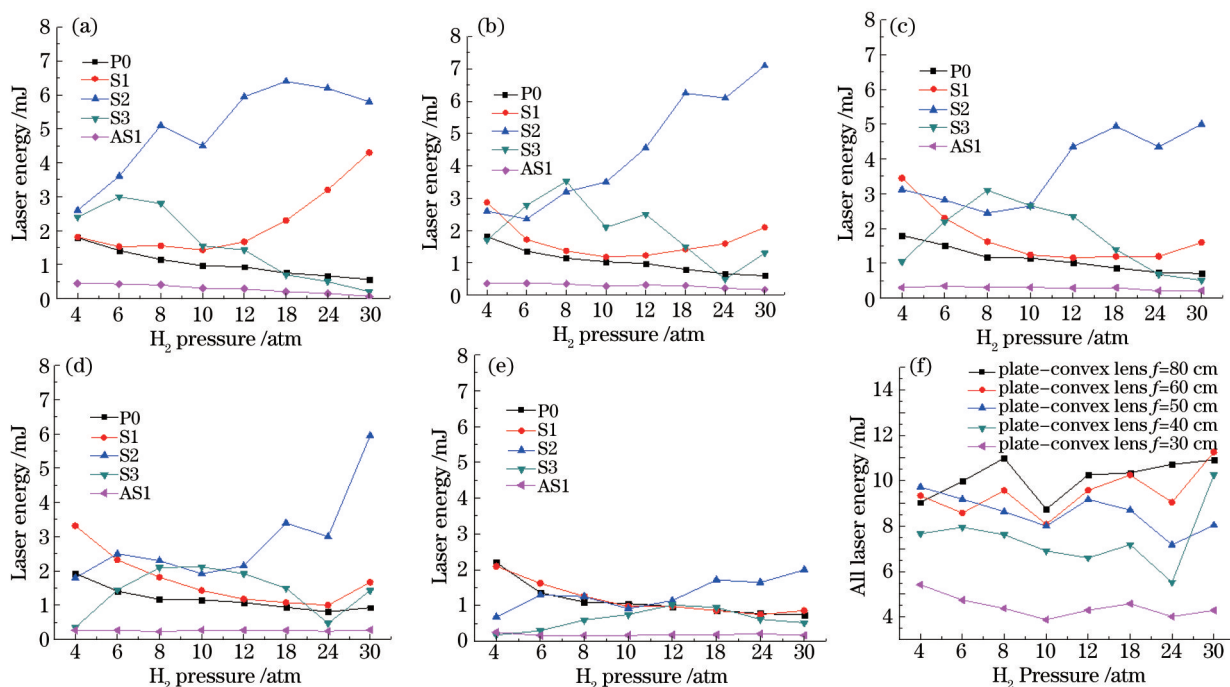


图 5 在不同焦距条件下氢气受激拉曼光能量与气压的关系图。(a) $f=80$ cm; (b) $f=60$ cm; (c) $f=50$ cm; (d) $f=40$ cm; (e) $f=30$ cm; (f) 所有的拉曼光总能量

Fig.5 Pressure dependence of SRS laser energy in H_2 at different focal lengths. (a) $f=80$ cm; (b) $f=60$ cm; (c) $f=50$ cm; (d) $f=40$ cm; (e) $f=30$ cm; (f) all Raman laser energy

从以上分析可以看出氢气在低气压区和高气压区的一级受激拉曼转换能量均较高。因为混合气体气压太高影响安全,所以在混合气体中加入了低气压的氢气。首先在拉曼管中充入 4 atm 的氢气,再充入 8 atm 的氖气。测量了不同透镜焦距透镜下拉曼管出射光的能量[如图 6(a)所示]。可以看出在混合气体中氢气的受激拉曼效应较强,氖气的受激拉曼效应较弱。焦距越长,氢气的受激拉曼光能量越大,而氖气的受激拉曼

光能量变化不大,这说明在此混合气体中氙气和氢气的受激拉曼效应存在竞争。由于氢气受激拉曼增益比氙气的大,在混合气体受激拉曼竞争中氢气仍然处于优势地位。因此还要增加氙气的气压,提高氙气在混合气体中的受激拉曼效应。最后拉曼管混合气体中氢气的气压仍然是4 atm,而氙气的气压增加到了12.5 atm,图6(b)为不同透镜焦距下拉曼管出射光的能量。从图6(b)中可以看出氙气的受激拉曼效应明显增强,而氢气的受激拉曼效应受到一定的抑制。在透镜焦距较大时,受激拉曼效应较强。

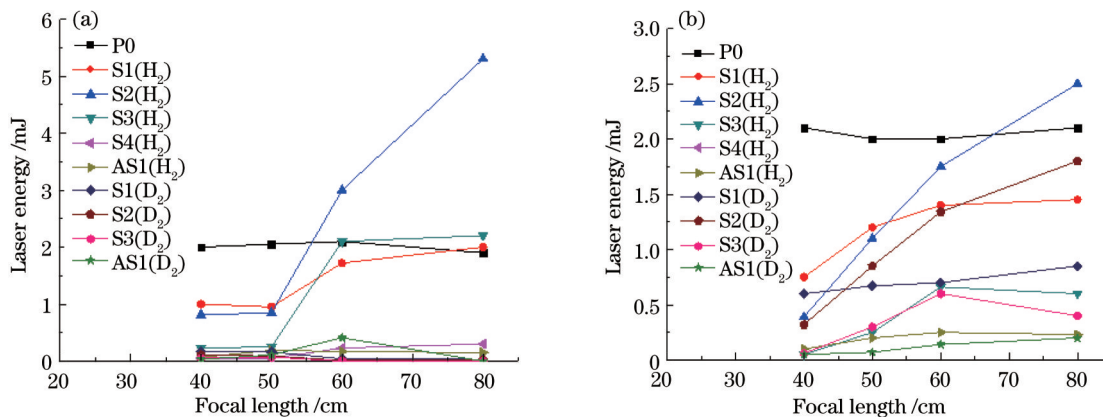


图6 氢气和氙气混合气中受激拉曼光能量。(a) 4 atm 氢气和 8 atm 氙气;(b) 4 atm 氢气和 12.5 atm 氙气

Fig.6 SRS laser energy in hydrogen and deuterium mixtures. (a) 4 atm hydrogen and 8atm deuterium; (b) 4 atm hydrogen and 12.5 atm deuterium

5 结 论

受激拉曼散射是扩展激光波长的重要方法,实验研究受激拉曼光与气体气压及透镜焦距的关系是应用受激拉曼光的重要手段。利用 Nd:YAG 激光器的四倍频 266 nm 激光在 H₂、D₂ 及 H₂/D₂ 混合气体中的拉曼散射特性进行研究。获得了 217.84~447.15 nm 之间 12 个波段的激光,有效地扩展了拉曼激光的应用范围。讨论了各级受激拉曼激光与气体气压和透镜焦距的关系。设计受激拉曼系统时分别对 H₂ 受激拉曼系统采用长焦距和高气压, D₂ 受激拉曼系统采用长焦距和低气压, H₂/D₂ 混合气体受激拉曼系统采用中等焦距并使氙气压力大于氢气。多波长的激光输出在激光雷达等领域有广泛的应用。特别是混合气体的受激拉曼光非常符合臭氧差分吸收激光雷达的光源要求,可以使激光雷达几何因子均匀,提高测量精度。

参 考 文 献

- Lan Xinju. Laser Technology [M]. Beijing: Science Press, 2000. 220-264.
蓝信钜. 激光技术[M]. 北京: 科学出版社, 2000. 220-264.
- Wang Zhihua, Gong Liji, Liu Jie, *et al.*. High efficient production of 1.053 μm pico-second Raman laser excited by Ti:Sapphire laser [J]. Chinese J Lasers, 2014, 41(7): 0702002.
王治华, 宫立基, 刘 杰, 等. 钛宝石激光激发高效 1.053 μm 拉曼激光的产生[J]. 中国激光, 2014, 41(7): 0702002.
- Zhang Wenhui, Ding Shuanghong, Ding Ze, *et al.*. A PbWO₄ solid-state Raman amplifier excited by 1064 nm nanosecond pulser [J]. Chinese J Lasers, 2014, 41(5): 0502011.
张文会, 丁双红, 丁 泽, 等. 1064 nm 纳秒脉冲激发的 PbWO₄ 固态拉曼放大器[J]. 中国激光, 2014, 41(5): 0502011.
- Wang Zefeng, Yu Fei, William Wadsworth, *et al.*. Single-pass high-gain 1.9 μm optical fiber gas Raman laser [J]. Acta Optica Sinica, 2014, 34(8): 0814004.
王泽锋, 于 飞, William Wadsworth, 等. 单程高增益 1.9 μm 光纤气体拉曼激光器[J]. 光学学报, 2014, 34(8): 0814004.
- Valentin Simeonov, Valentin Mitev, Hubert van den Bergh, *et al.*. Raman frequency shifting in a CH₄:H₂:Ar mixture pumped by the fourth harmonic of a Nd:YAG laser [J]. Appl Opt, 1998, 37(30): 7112-7115.
- 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.
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 Laurent de Schoulepnikoff, 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.
- 8 S Tzortzakis, G Tsaknakis, A Papayannis, *et al.*. Investigation of the spatial profile of stimulated Raman scattering beams in D₂ and H₂ gases using a pulsed Nd: YAG laser at 266 nm [J]. *Appl Phys B*, 2004, 79(1): 71–75.
- 9 Fan Guangqiang, Liu Jianguo, Liu Wenqing, *et al.*. Experimental determination of lidar geometric factor in differential absorption lidar [J]. *Chinese J Quantum Electronics*, 2013, 30(1): 93–97.
范广强, 刘建国, 刘文清, 等. 差分吸收激光雷达几何因子实验确定方法[J]. *量子电子学报*, 2013, 30(1): 93–97.
- 10 Tao Zongming, Zhang Yinchao, Lu Yonghui, *et al.*. Effect of stimulated Raman scattering pumped by fourth harmonic Nd:YAG laser in methane and analysis of its physical processes [J]. *Acta Physica Sinica*, 2004, 53(8): 183–188.
陶宗明, 张寅超, 吕勇辉, 等. Nd:YAG 四倍频激光抽运甲烷后的受激拉曼效应及其物理机制分析[J]. *物理学报*, 2004, 53(8): 183–188.
- 11 Wu Yonghua, Yue Guming, Hu Huanling, *et al.*. D₂ stimulated Raman scattering pumped by fourth harmonic Nd:YAG laser and its application in laser radar [J]. *Chinese J Lasers*, 2000, 27(9): 823–827.
吴永华, 岳古明, 胡欢陵, 等. Nd:YAG 四倍频激光抽运氘后的拉曼效应及其在激光雷达中的应用[J]. *中国激光*, 2000, 27(9): 823–827.
- 12 Yang Yuanhong, Yang Wei, Jiang Ting, *et al.*. Investigation on characteristics of stimulated Raman threshold in single mode fiber[J]. *Acta Optica Sinica*, 2014, 34(1): 0129001.
杨远洪, 杨 巍, 蒋 婷, 等. 单模光纤中受激拉曼散射的阈值特性研究[J]. *光学学报*, 2014, 34(1): 0129001.
- 13 L Schoulepnikoff, V Mitev. 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(2): 277–302.
- 14 K Sentrayan, L Major, A Michael, *et al.*. Observation of intense Stokes and anti-Stokes lines in CH₄ pumped by 355 nm of a Nd: YAG laser [J]. *Appl Phys B*, 1992, 55(4): 311–318.

栏目编辑: 史 敏