

LDS751 染料的受激喇曼散射^{*}

李昌勇 张临杰 肖连团 尹王保 马维光 贾锁堂

(山西大学电子信息系, 量子光学和光量子器件国家重点实验室, 太原 030006)

(2001 年 7 月 2 日收到 2001 年 9 月 10 日收到修改稿)

报道了用 532nm 激光抽运 LDS751 染料产生 720—780nm 可调谐染料激光输出的同时, 观察到喇曼频移为 102 和 45 cm^{-1} 的反斯托克斯线, 前者谱线较强, 后者较弱. 与这两条强线对应的斯托克斯线未能观察到. 另外, 还观察到喇曼频移为 34 cm^{-1} 的一级和二级斯托克斯线与反斯托克斯线.

关键词: LDS751 染料, 受激喇曼散射, 喇曼位移, 斯托克斯线, 反斯托克斯线

PACC: 4265C, 3320F, 4255M

1. 引言

激光的问世为喇曼散射提供了强的激发源, 新的喇曼散射现象和喇曼散射材料不断被发现^[1]. 可调谐染料激光器在许多领域都得到了广泛应用, 但许多染料在激光的激发下能够产生喇曼散射^[2-4]. 如果抽运光较强的话, 还会产生受激喇曼效应. 在许多情况下受激喇曼散射线比较强, 应该考虑散射线对实验或研究结果的影响.

本文报道了用 532nm 激光抽运 LDS751 染料产生 720—780nm 可调谐染料激光输出的同时, 产生了受激喇曼散射现象.

2. 实验装置

实验装置与染料激光光路如图 1 所示. 本实验使用美国光谱物理公司生产的 Nd:YAG 激光二倍频产生 532nm 激光, 然后抽运 LDS751 染料(美国产). 染料溶剂为分析纯甲醇(纯度大于 99.5%). 染料激光的输出波长范围为 720—780nm. 用美国产 Acton 566 单色仪分光后由 9558 QB 倍增管实现光电转换, 然后将信号输入 Stanford Research System 公司产 BOXCAR 进行积分平均和模数转换, 最后输入微机实现数据采集. 激光可在 720—780nm 波段内连续可调. 激光脉宽约为 7ns, 重复频率为 10 Hz. 实验使用了 HP 54111D 型 500MHz 数字示波器.

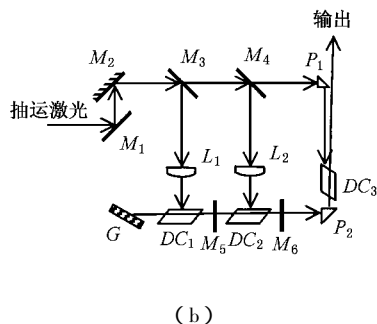
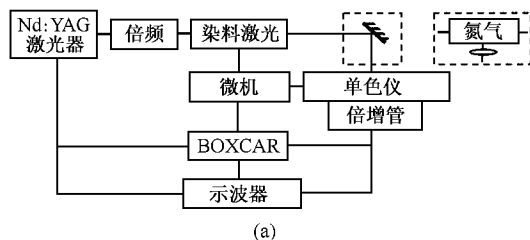


图 1 实验装置(a)与染料激光光路图(b)
 M 为全反或半反镜; P 为棱镜, DC 为染料池; G 为光栅; L 为透镜

3. 相关理论

受激喇曼散射能够产生较强的斯托克斯线和反斯托克斯线, 这是由于介质对斯托克斯线和反斯托克斯线具有增益作用.

对于激光激励下产生的正常喇曼散射, 虽然入射光是相干的, 但由于声子是由于热振动所引起的, 其相位是无规则分布的. 因此散射光位相也是无规

^{*} 国家自然科学基金(批准号 50078009)和山西省青年科学基金资助的课题.

则分布 ,是不相干的.但在受激喇曼散射过程中 ,入射光子主要不是由热振动声子所散射 ,而是被受激的相干声子所散射.所以受激散射后所产生的斯托克斯光子也是相干的.这样 ,只要有足够多的入射光子 ,就可以产生高强度的斯托克斯散射光.当入射光强足够大时 ,就必须考虑有两个波同时与分子相作用 ,即频率为 ω_1 的激光波和频率为 $\omega_s = \omega_1 - \omega_{mn}$ 的斯托克斯波 ,这时理论上可以算出分子偶极矩提供的平均速率^[5]为

$$\begin{aligned} W' &= -\frac{1}{T} \int_0^T \frac{dP}{dt} E_s dt \\ &= \frac{f}{4m\gamma} \frac{d\alpha}{dx} \frac{\omega_s}{\omega_1 - \omega_s} (E_1 \cdot E_s)^2, \end{aligned}$$

式中 m 为分子质量 , γ 为分子的阻尼系数 , f 为作用于分子偶极矩上的合力 , α 为介质的折射率.对于斯托克斯辐射 ,因为 $(\omega_1 - \omega_s) = \omega_{mn} > 0$,所以 $W' > 0$,即极化矩对斯托克斯线的增益是正的 ,且正比于 $(E_1 \cdot E_s)^2$.

对于反常喇曼散射或反斯托克斯喇曼散射过程中 ,除必须考虑上述两个波的作用之外 ,还必须考虑反斯托克斯场 E_{as} 的自作用.这时理论上可以算出光场对反斯托克斯谱线的贡献^[5]为

$$W'' = \frac{f}{4mr} \frac{d\alpha}{dx} \frac{\omega_{as}}{\omega_{nm}} (E_1 \cdot E_s)(E_1 \cdot E_{as}).$$

这一项大于零 ,表示正增益.即极化矩对反斯托克斯线的增益是正的 ,且正比于 $(E_1 \cdot E_s)(E_1 \cdot E_{as})$.

我们可以把反斯托克斯受激喇曼散射看成是两个阶段.第一个阶段 ,激光 E_1 与斯托克斯场 E_s 通过介质的极化作用 ,产生受激的斯托克斯辐射和受激光声子 ,其波矢方程为 : $K_1 = K_s + K_{mn}$,同时介质的折射率被 E_1, E_s 的差频所调制.第二阶段为被调制的媒质与激光作用 ,产生反斯托克斯辐射.也就是受激声子与激光作用 ,产生反斯托克斯辐射 K_{as} ,其波矢方程为 : $K_1 + K_{mn} = K_{as}$.图2为受激喇曼散射的示量图,可以用来解释各高阶反斯托克斯谱线的产生.所遵从的能量和动量守恒方程分别为 $\omega_n^s = \omega_1 - n\omega_{mn} = \omega_{n-1}^s - \omega_{mn}$, $\omega_n^{as} = \omega_1 + n\omega_{mn} = \omega_{n-1}^{as} + \omega_{mn}$, $K_n^s = K_{n-1}^s - K_{mn}$, $K_n^{as} = K_{n-1}^{as} + K_{mn}$.即当激光强度足够强时 ,以致于远远超过受激喇曼散射的阈值时 ,一级正、反斯托克斯线的强度发展到一个可观的数值 ,相干受激喇曼散射 (CSRC) 过程和具有作为输入的第一级散射谱线的受激喇曼增益 ,产生第二级反、正斯托克斯频率 $\omega_1 \pm n\omega_{mn}$,然后这些高级次

的正、反斯托克斯分量作为输入 ,以串级方式产生更高级次正、反斯托克斯辐射.每次相对激光频率的频率移正好是分子的喇曼频率.

高阶的斯托克斯辐射和反斯托克斯辐射同样可以看作是由调制的媒质所产生的声波场对激光的非弹性散射过程^[5].这就解释了斯托克斯谱和反斯托克斯谱不是同时出现的物理现象.

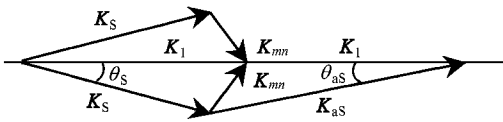


图2 受激喇曼散射的矢量图

4. 实验结果与讨论

4.1. 在激光波长为 730—775nm 时伴随的受激反斯托克斯线

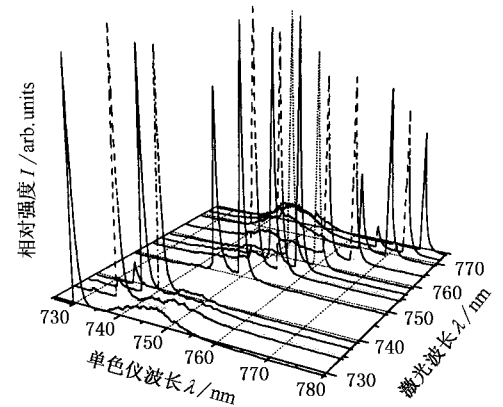


图3 激光波长在 730—775nm 范围内观察到的反斯托克斯线

图3所示为激光束通过1个大气压氮气时,从侧向收集到的被氮气散射的光信号.使用氮气散射激光束的目的是降低光强,以便于使用倍增管测量.图3中每条曲线都是激光波长固定不变,然后扫描单色仪所测得的结果.可以看出,随着激光波长的增加,喇曼位移为 102cm^{-1} 的反斯托克斯线的波长也逐渐增加.反斯托克斯线的强度在 755nm 附近已经超过输出激光的强度,这是由于受激喇曼介质对喇曼散射线有放大作用(有增益),在 755nm 附近激光强度最大,喇曼散射线得到最大的增益效果.未能观察到相应的斯托克斯线.图3中 $735\text{—}755\text{nm}$ 的较弱的凸起是染料的荧光信号.

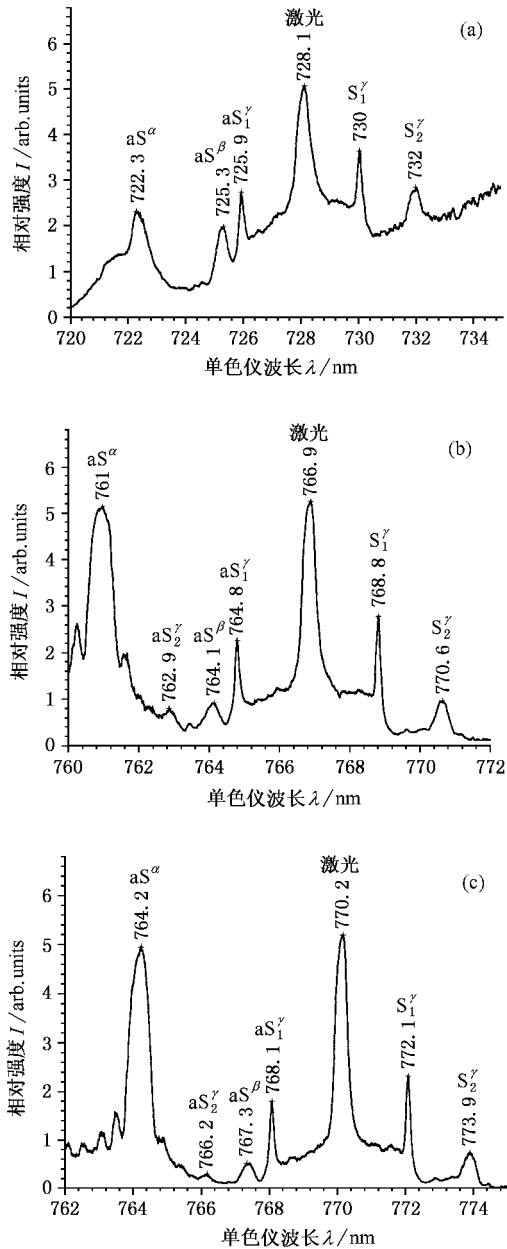


图4 (a)(b)(c)分别为激光波长为 728.1 ,766.9 ,770.2nm 时 LDS751 染料的受激喇曼散射光谱 S 表示斯托克斯线 ; aS 表示反斯托克斯线 ,上标 α , β 和 γ 分别表示喇曼频移为 104 45 和 34cm⁻¹的喇曼散射线 ,下标 1 ,2 分别表示喇曼频移为 45 cm⁻¹的一级和二级喇曼散射线

4.2. 一级和二级斯托克斯线与反斯托克斯线

图4 中(a)(b)(c)分别为激光波长固定为 728.1 ,766.9 ,770.2nm 时激光扩束后(图4 未画出扩束器件)直接进入单色仪并扫描单色仪所观察到的结果.从这 3 个图中可以看出,除了喇曼位移为 102cm⁻¹的较强的和喇曼位移为 45cm⁻¹较弱的反斯托克斯线出现外,还可以观察到激光波长两边还有等间距的较弱谱线.相邻间距用波数来表示为 34cm⁻¹,波长大于激光波长的两条谱线分别为一级和二级斯托克斯线,波长小于激光波长的两条谱线(波长为 728.1nm 时只观察到一级反斯托克斯线)分别为一级和二级反斯托克斯线.且一级斯托克斯线与反斯托克斯线的强度小于激光强度,二级散射谱线强度小于对应的一级谱线强度,同级反斯托克斯线强度小于斯托克斯线强度,这些都是受激喇曼散射的特征.

4.3. 讨 论

根据本实验结果可得知 ,LDS751 染料能够产生频移分别为 102 ,34 ,45cm⁻¹的三种受激喇曼散射.而且第一种和第三种频移只出现反斯托克斯线,对于第二种频移,一级和二级正、反斯托克斯线都能够观察到,这些频移反映了染料分子的能级间隔,这些能级信息是无法从红外光谱中获得的.

实验误差主要由激光强度的无规则波动造成峰值波长测量误差,另外单色仪齿轮啮合的不可重复性也可以带来误差.经过多次重复实验确定使用本系统在此实验中所测波长值的误差不超过 ± 0.2nm.

[1] Ye X L , Deng W J , Liang E J and Kiefer W 1997 *Acta Phys . Sin .* **46** 2130 (in Chinese) [叶晓岚、邓文杰、梁二军 , Kiefer W 1997 物理学报 **46** 2130]

[2] Bell M , Clark R J H and Gibbs P J 1997 *Spectrochimica Acta A* **53** 2159

[3] Clark R J H and Gibbs P J 1997 *J . Raman Spectr .* **28** 99

[4] Burgio L , Ciomartan D A and Clark R J H 1997 *J . Molec . Struc .* **405** 1

[5] Zhang G W and Wang Z M 1989 *Laser Spectroscopy Principle and Technology* (Beijing : Beijing Institute of Technology Press) pp326—327 [in Chinese] [张国伟、王兆民 1989 激光光谱学原理与技术 (北京 : 北京理工大学出版社) 第 326—327 页]

Stimulated Raman scattering of LDS751 dye^{*}

Li Chang-Yong Zhang Lin-Jie Xiao Lian-Tuan Yin Wang-Bao Ma Wei-Guang Jia Suo-Tang

(*Department of Electronics & Information Technology , State Key Laboratory of Quantum Optics and Quantum Optics Devices ,
Shanxi University , Taiyuan 030006 ,China*)

(Received 2 July 2001 ; revised manuscript received 10 September 2001)

Abstract

Raman scattering spectra of LDS751 dye were observed accompanying the dye laser output when pumped by a double YAG laser. The anti-Stokes lines with Raman shift 102 and 45 cm^{-1} were observed. The former was strong and the latter was weak. The Stokes lines corresponding to them were not observed. In addition , the first-order and second-order Stokes and anti-Stokes lines with frequency shift 34 cm^{-1} were observed synchronously. The experimental results were analyzed qualitatively.

Keywords : LDS751 dye , stimulated Raman scattering , Raman frequency shifting , Stokes line , anti-Stokes line

PACC : 4265C , 3320F , 4255M

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No.60078009) and by the Science Foundation of Young Scientists of Shanxi Province ,China.