

不同波长激光激发下 C_6H_{12} 受激拉曼散射模式竞争*

梁慧敏¹⁾ 杜惊雷^{1)†} 王宏波¹⁾ 王治华¹⁾ 罗时荣¹⁾ 杨经国¹⁾
郑万国²⁾ 魏晓峰²⁾ 朱启华²⁾ 黄晓军²⁾ 王晓东²⁾ 郭 仪²⁾

1) 四川大学物理系, 成都 610064)

2) 中国工程物理研究院激光聚变研究中心, 绵阳 621900)

(2006 年 12 月 27 日收到, 2007 年 7 月 6 日收到修改稿)

发现不同波长激光激发下 C_6H_{12} 的受激拉曼散射模式竞争现象. 在不同波长的激光激发下, 不同拉曼模式的 Stokes 光占优势. 短波长(404–532 nm)激光激发时小频移模式 ω_1 (802 cm^{-1})为弱增益模式, 大频移模式 ω_2 (2852–3038 cm^{-1})为强增益模, 主要产生 ω_2 模式的 Stokes 光. 长波长(808 nm)激光激发时小频移模式 ω_1 为强增益模式, 大频移模式 ω_2 为弱增益模式, 有利于 ω_1 模式 Stokes 光输出. 在普通激光拉曼光谱实验中观察到类似现象. 讨论了这一现象的产生机理及应用前景.

关键词: 模式竞争, C_6H_{12} , 受激拉曼散射

PACC: 4265, 4265C, 3320F

1. 引 言

受激拉曼散射(SRS)是激光频率调谐的重要物理基础之一^[1,2], 与染料调频激光器和光学参量振荡器相比, 拉曼激光具有线宽和脉冲宽度狭窄、方向性良好、设备相对简单和价格低廉等优点^[3,4]. 不同的拉曼介质具有不同的拉曼频移, 可以通过改变拉曼介质来调谐激光频率^[5]. 用几种不同波长的激光器及几种拉曼频移不同的散射介质, 便可由可见光得到从紫外到红外的相干辐射源^[6–9]. 由于它的低转换效率限制了它的实际应用, 因而提高 SRS 转换效率的研究成为近年来调频激光领域的一个研究热点^[10–13]. 一般而言, 同一种拉曼介质有一组拉曼模式, 在不同拉曼模式间存在竞争. 模式间的竞争导致在 SRS 中仅出现某一最强增益拉曼模式的 Stokes 波输出, 但在特殊条件下可获得弱增益模式 Stokes 波. Kwok 等^[10]将若丹明 6G(R6G)加入乙醇中, 选择合适激发波长使乙醇的弱增益模式与 R6G 荧光峰重叠, 强增益模式位于荧光峰外, 当激发光强度为 0.2 GW/cm^2 时, 所得弱增益模式的强度比纯乙醇溶

液时放大了 100 倍. 普小云等^[14,15]将激光染料 R640 加入乙醇, 通过改变浓度使 R640 染料增益峰值与乙醇弱增益拉曼模式重叠, 获得了频移在 2800 cm^{-1} 附近的 3 个弱增益模式的 SRS Stokes 波. 上述工作在液滴型微腔中实现, 难以获得稳定可控的 Stokes 光输出. 一般情况下, 在 C_6H_{12} SRS 中产生强增益模式 ω_2 (2852–3038 cm^{-1})的 Stokes 光^[16]. 本工作在 C_6H_{12} SRS 实验中(激发光波长 532 nm)发现 C_6H_{12} SRS 谱图中不仅出现了 ω_2 模式的一阶 Stokes 谱线, 而且还出现了 ω_1 模式的一阶 Stokes 谱线. 改用不同波长激光激发 C_6H_{12} 时, 发现两个模式间产生 SRS 竞争. 即激发光波长不同, C_6H_{12} 的 SRS Stokes 光输出模式不同. 404 nm 激光激发 C_6H_{12} 时, 仅有 ω_2 模式的 Stokes 光产生. 532 和 808 nm 激光激发时 ω_1 (802 cm^{-1})和 ω_2 模式同时出现. 532 nm 激光激发时 ω_2 模式仍占优势, 808 nm 激光激发时 ω_1 模式占优势. 改变激发光波长, C_6H_{12} 的 SRS 输出模式不同, 利用这一属性可通过选择激发波长, 实现 C_6H_{12} 不同拉曼模式的 SRS Stokes 光输出, 丰富了拉曼激光调谐频率.

* 国家自然科学基金(批准号: 60478044, 60676024)和高温高密度等离子体物理国家重点实验室(批准号: CD200507)资助的课题.

† E-mail: dujinglei@tom.com

2. 实验及主要结果

实验装置框图如图 1 所示,激光通过分束镜 (BS) 后由聚焦透镜 L_1 会聚进入拉曼样品池 (池长

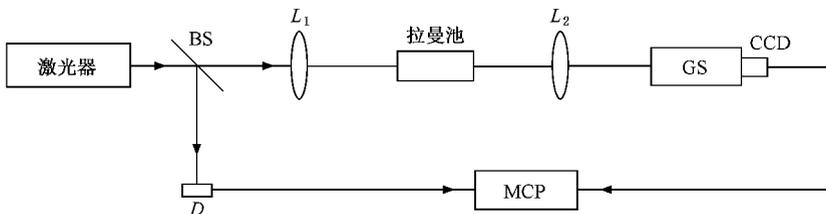


图 1 实验装置框图

利用图 1 所示的实验装置,进行了 C_6H_{12} SRS 输出模式随激发光波长的改变而改变的实验研究,研究结果如图 2 所示. 图 2 中 L 表示剩余激发光, $S_m-\omega_n$ 和 $AS_m-\omega_n$ ($m=1, 2, 3; n=1, 2$) 分别表示模 ω_n 的第 m 阶 Stokes 线和反 Stokes 线. 这里 $\omega_1 = 802 \text{ cm}^{-1}$, $\omega_2 = 2852-3038 \text{ cm}^{-1}$. 图 2(a) 是利用经脉冲展宽后的掺 Ti 蓝宝石激光器 (808 nm) 倍频光 (404 nm) 激发 C_6H_{12} 所获得的 SRS 谱, 激发能量为 0.5 mJ, 脉冲宽度为 384 ps, 此时只有 ω_2 模的 Stokes 光输出. 使用 Nd:YAG 激光器倍频光 (532 nm) 激发

20 cm), 散射介质为分析纯 C_6H_{12} . 由 C_6H_{12} 产生的 SRS Stokes 光被聚焦透镜 L_2 会聚入射到光栅光谱仪 (GS), CCD 探测器及相关电路转换光信号为相应的电信号后输入计算机 (MCP), MCP 用来进行光谱的采集、分析和存储. 光电二极管 D 用于系统同步.

C_6H_{12} 的 SRS 输出光谱如图 2(b) 所示, 激发能量约为 0.46 mJ, 脉冲宽度为 248 ps. 由图 2(b) 可见, ω_1 和 ω_2 的 Stokes 光同时产生, 但 ω_2 的 Stokes 光占优势. 用经脉冲展宽后的掺 Ti 蓝宝石激光器输出激光 (808 nm) 激发 C_6H_{12} 所获得 SRS 光谱如图 2(c) (d) 所示, 图 2(c) 对应的激发能量为 3 mJ, 图 2(d) 对应的激发能量为 10 mJ. 从图 2(c) 可以看出, 此时 ω_1 模式已占优势. 图 2(d) 中 ω_1 模输出多阶反 Stokes 线和 Stokes 线, 第一阶 Stokes 线得到大大增强, ω_2 模式受抑制几乎消失.

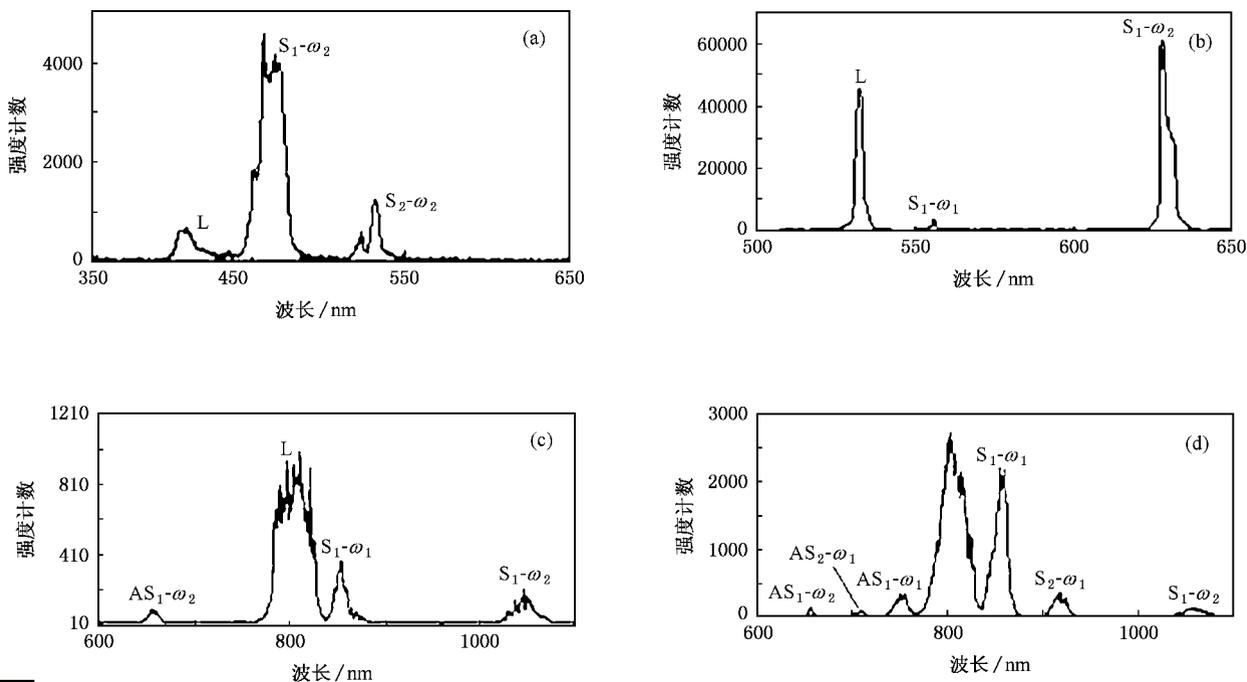


图 2 不同波长激光激发下 C_6H_{12} 的 SRS 光谱 (a) 404 nm, (b) 532 nm (c) 808 nm (激发能量 3 mJ) (d) 808 nm (激发能量 10 mJ)

拉曼介质受到强激光激发时,普通激光拉曼散射中增益因子最高的模式出现 SRS. 在 C_6H_{12} 普通激光拉曼光谱实验中观察到激发波长改变时出现拉曼模式竞争现象. 图 3 是在氩离子激光器(488 nm)和半导体激光器(785 nm)的激光激发下,用 JY-HR800 型拉曼光谱仪采集得到的 C_6H_{12} 激光拉曼光谱. 由图 3 可知,在短波长 488 nm 激光激发下大频移模式 ω_2 为强增益模式, ω_2 的 Stokes 光占优势,如图 3(a) 所示. 长波长激光 785 nm 激发下小频移模式 ω_1 为强增益模式, ω_1 的 Stokes 光占优势,如图 3(b) 所示.

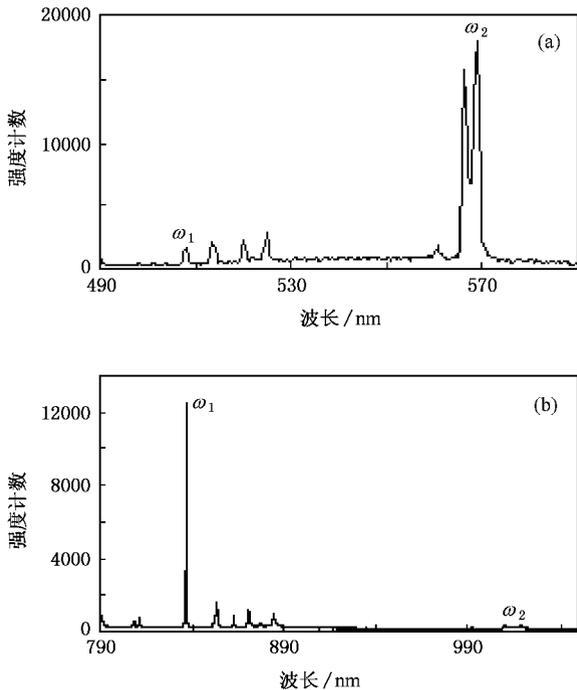


图 3 不同波长激光激发 C_6H_{12} 的激光拉曼光谱 (a) 488 nm, (b) 785 nm

在苯(C_6H_6)、丙酮(C_3H_6O)和乙醇(C_2H_5OH)的激光拉曼光谱实验中,发现各个输出模式强度关系随激发光波长的改变而改变的类似现象. 当长波长激光激发时,拉曼频移较小的模式 Stokes 光占优势,当短波长激光激发时,较大模式的 Stokes 光占优势.

3. C_6H_{12} 不同模式增益因子估算

由受激拉曼散射理论可知,在稳态和小信号近似下,忽略高阶 Stokes 辐射,前向一阶 Stokes 强度可由下式表示^[17]:

$$I_{S_1}(l) = I_{S_1}(0) \exp[(g_{S_1} I_p - \alpha)l], \quad (1)$$

式中 $I_{S_1}(l)$ 为第一阶 Stokes 光相对强度, l 为拉曼池长, g_{S_1} 为第一阶 Stokes 增益因子, I_p 为激发光强度, α 为线性光学吸收系数.

一般情况下,可令 $I_{S_1}(0) = 10^{-12}$ ^[17], 忽略吸收 ($\alpha = 0$) 则小信号下增益因子

$$g_{S_1} = \ln(10^{12} I_{S_1}(l)) / (I_p l). \quad (2)$$

由上述实验结果计算(实验中 $l = 20$ cm)得到激发光波长为 532 nm 时, C_6H_{12} SRS 第一阶 Stokes 增益因子的值分别为 $g_{\omega_1} = 1.0 \times 10^{-2}$ cm/MW, $g_{\omega_2} = 1.1 \times 10^{-2}$ cm/MW. 激发光波长为 808 nm 时,则增益因子的值分别为 $g_{\omega_1} = 2.95 \times 10^{-2}$ cm/MW, $g_{\omega_2} = 2.92 \times 10^{-2}$ cm/MW. 由计算结果可知,实验中获得 532 nm 激光激发时大频移模式 ω_2 的 SRS 增益因子大于小频移模式 ω_1 的增益因子,808 nm 激光激发下小频移模式 ω_1 的 SRS 增益因子大于大频移模式 ω_2 的增益因子.

4. 讨 论

由 C_6H_{12} 各种构象的能量关系(图 4)知^[18], C_6H_{12} 分子从船式构象状态变换至扭船式的振动产生 ω_1 模式,需要 6.7 kJ/mol 的激发能量;自扭船式状态变换到椅式构象的振动产生 ω_2 模式,所需激发能量为 23 kJ/mol. ω_1 是 C_6H_{12} 中 C 环的呼吸振动模式, C—C 键长为 0.1528 ± 0.0005 nm, ω_2 是 CH 基团的伸缩振动模式, C—H 键长为 0.1117 ± 0.0005 nm^[19]. 短波长激光的光子能量高,有利于分子键长短、振动频率较高的 ω_2 模式输出,抑制了分子长键、振动频率较低的小频移模式 ω_1 的 SRS 产生;长波长激光光子能量较低不利于分子短键、振动频率

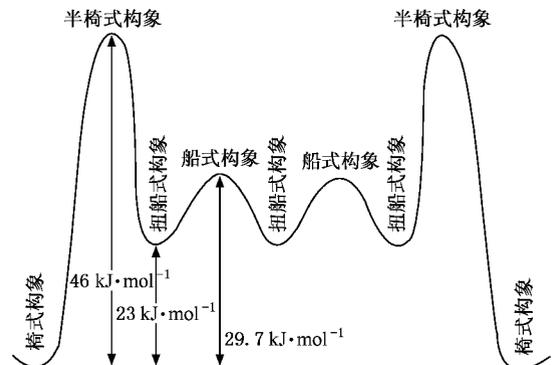


图 4 C_6H_{12} 各种构象的能量关系

较高的大频移模式 ω_2 的 SRS 产生. 由于模式间的竞争, 强增益模式 ω_1 Stokes 光的产生抑制 ω_2 模式 Stokes 光的产生.

波长不变, 提高激发光能量可以增强优势拉曼模式抑制劣势拉曼模式. 由(1)式知, $I_{S_1}(l)$ 随 g_{S_1} 和 I_p 的乘积指数规律增加, 由于强拉曼模式比弱拉曼模式的增益因子大, 强拉曼模式的 $I_{S_1}(l)$ 的增加比较快, 弱增益拉曼模式受到抑制.

5. 结 论

由实验结果可知, 短波长(404, 532 nm)激光激

发 C_6H_{12} , ω_2 模式的增益因子较大, 主要产生 ω_2 的 SRS Stokes 光. 长波长(808 nm)激光激发, ω_1 的增益因子较大, 利于 ω_1 的 SRS Stokes 光输出. 808 nm 激光激发时, 增加激发能量强增益模式得到进一步增强, 弱增益模式被抑制.

研究工作表明, 通过改变激发光波长可选择激发 C_6H_{12} 不同拉曼模式, 获得不同波长的 Stokes 光, 同时, 在激发波长一定的情况下通过增加激发光能量可增强所选择的拉曼模式. 该研究工作提供了一种拉曼激光频率调谐的新途径. 另外, 在不考虑激发光波长的情况下而认为某一拉曼模式为介质的强增益模式是不确切的.

-
- [1] Fields M H, Poop J, Chang R K 1996 *Opt. Lett.* **21** 1457
- [2] Chen Y F 2004 *Opt. Lett.* **29** 1251
- [3] Brasseur J K, Repasky K S, Carlsten J L 1998 *Opt. Lett.* **23** 367
- [4] Meng L S, Roos P A, Repasky K S, Carlsten J L 2001 *Opt. Lett.* **26** 426
- [5] Hofmann T, Tittel F K 1993 *Quantum Electron.* **29** 970
- [6] Kurta S K, Giordmaine J A 1969 *Phys. Rev. Lett.* **22** 193
- [7] Gelbwachs J, Pantell R H, Puthoff H E, Yarborough J M 1969 *Appl. Phys. Lett.* **14** 258
- [8] Pateland C K N, Shaw E D 1970 *Phys. Rev. Lett.* **24** 451
- [9] Pateland C K N, Shaw E D 1971 *Phys. Rev.* **B 3** 1279
- [10] Kwok A S, Chang R K 1992 *Opt. Lett.* **17** 1262
- [11] Li Z S, Cheng J, Wang Z H, Luo S R, Yang J G 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 4164 (in Chinese) [李振声、程娟、王治华、罗时荣、杨经国 2005 物理学报 **54** 4164]
- [12] Pu X Y, Yang R, Wang Y L, Chen T J, Jiang N 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 2509 (in Chinese) [普小云、杨睿、王亚丽、陈天江、江楠 2004 物理学报 **53** 2509]
- [13] Li C Y, Zhang L J, Xiao L T, Yin W B, Ma W G, Jia S T 2002 *Acta Phys. Sin.* **51** 814 (in Chinese) [李昌勇、张临杰、肖连团、尹王保、马维光、贾锁堂 2002 物理学报 **51** 814]
- [14] Pu X Y, Yang Z, Jiang N, Chen Y K, Dai H 2003 *Acta Phys. Sin.* **52** 2443 (in Chinese) [普小云、杨正、江楠、陈永康、戴宏 2003 物理学报 **52** 2443]
- [15] Pu X Y, Yang Z, Lee W K 2004 *J. Opt. Soc. Am. B* **21** 343
- [16] Zheng S X 1985 *Laser Raman Spectroscopy* (Shanghai: Shanghai Science and Technology Press p160) (in Chinese) [郑顺旋 1985 激光喇曼光谱学(上海:上海科学技术出版社)第 160 页]
- [17] Arecchi F T, Schulz-Dubois E O 1979 *Physical Application of Laser* (Beijing: Science Press) p80 (in Chinese) [阿雷克 F T、舒尔茨-杜波依斯 E O 1979 激光的物理应用(中译本)(北京:科学出版社)第 80 页]
- [18] Lu C X, Du H G 2003 *Organic Chemistry* (Beijing: Science Press) p715 (in Chinese) [鲁崇贤、杜洪光 2003 有机化学(北京:科学出版社)第 715 页]
- [19] Wiberg K B, Shrake A 1973 *Spectrochim. Acta A* **29** 583

Stimulated Raman scattering mode competition in C_6H_{12} under different pump wavelength^{*}

Liang Hui-Min¹⁾ Du Jing-Lei^{1)†} Wang Hong-Bo¹⁾ Wang Zhi-Hua¹⁾ Luo Shi-Rong¹⁾ Yang Jing-Guo¹⁾
Zheng Wan-Guo²⁾ Wei Xiao-Feng²⁾ Zhu Qi-Hua²⁾ Huang Xiao-Jun²⁾ Wang Xiao-Dong²⁾ Guo Yi²⁾

¹⁾ *Department of Physics, Sichuan University, Chengdu 610064, China*

²⁾ *Research Center of Laser Fusion, China Academy of Engineering Physics, Mianyang 621900, China*

(Received 27 December 2006; revised manuscript received 6 July 2007)

Abstract

The stimulated Raman scattering mode competition in hexamethylene (C_6H_{12}) pumped by different wavelength is observed. The high-gain Raman mode is determined by the pump wavelength. The Raman mode ω_2 (2852—3038 cm^{-1}) is generated when pumped by short wavelength (404, 532 nm) laser, while the Raman mode ω_1 (802 cm^{-1}) is generated when pumped by the long wavelength (808 nm) laser. Similar phenomenon is generally observed in Raman experiments. The mechanism of the phenomenon and its possible application are discussed.

Keywords : mode competition, hexamethylene, stimulated Raman scattering

PACC : 4265, 4265C, 3320F

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 60478044, 60676024) and the State Key Laboratory for High-Temperature and High-Density Plasma Physics, China (Grant No. CD200507).

[†] E-mail: dujinglei@tom.com