

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

陶宗明 张寅超 吕勇辉 胡顺星 邵石生 曹开法 刘小勤 岳古明 胡欢陵

(中国科学院安徽光学精密机械研究所大气光学重点实验室, 合肥 230031)

(2003 年 10 月 17 日收到 2003 年 12 月 24 日收到修改稿)

从理论上分析了激光被聚焦到高压气体内可能发生各种非线性现象的规律及其相互作用和相互干扰. 在实验中把 Nd:YAG 四倍频激光聚焦到充有甲烷的拉曼管内, 测各阶斯特克斯光输出能量与气压 p_a 、透镜焦距 f 和输入能量 E_p 之间的关系. 实验结果与理论分析定性地相符合, 这就为我们优化和利用受激拉曼过程提供了理论和实验依据.

关键词: 非线性过程, 受激拉曼散射, 四波混频, 激光诱导离解

PACC: 4265, 7830

1. 引言

激光雷达是探测大气气溶胶和大气中微量成分的一种有效方法^[1]. 激光技术是激光雷达中的一个关键技术, 像染料激光器、Nd:YAG 激光器、CO₂ 激光器、准分子激光器及可调谐钛宝石激光器等都已成功地用于大气探测领域^[2]. 受激拉曼散射(SRS)可以产生多个波长的、高强度的相干辐射, 因此在拓宽激光波长方面有着诱人的吸引力, 它已被广泛地应用于差分激光雷达中^[3,4].

甲烷作为拉曼激活气体被 Nd:YAG 四倍频激光抽运后, 其中要发生多个非线性过程, 而这多个非线性过程又是相互作用的, SRS 只是其中的一个过程. 要优化 SRS 过程, 就要对所有的非线性过程有一个定性的了解. 本文首先分析了甲烷气体内多个非线性过程的规律, 然后介绍实验装置, 最后对实验结果进行分析和讨论.

2. 气体内的非线性过程分析

当高强度的激光入射到激活介质(甲烷气体)中后, 气体中不但会发生线性效应, 而且还会发生非线性效应. 如 SRS、四波混频(FWM)、激光诱导离解(LID)、激光诱导击穿(LIB)、受激布里渊散射(SBS)等. 文献 5—7 就分别研究了这些非线性效应. 而这些非线性效应往往是共存的, 它们相互干扰、相互竞

争. 要搞清楚每一个过程的详细情况, 一般情况下是不容易的. 首先我们假设以上那些非线性过程是独立的, 分析每一个过程的物理机制, 然后再讨论它们之间的相互影响.

2.1. SRS 过程

SRS 是一个三阶非线性过程, 如图 1 所示. 频率为 ν_p 的激光入射到激活介质中可产生频率变小为 ν_s 的斯托克斯光和频率变大为 ν_{as} 的反斯托克斯光. 斯托克斯光和反斯托克斯光各自又有多阶可分.

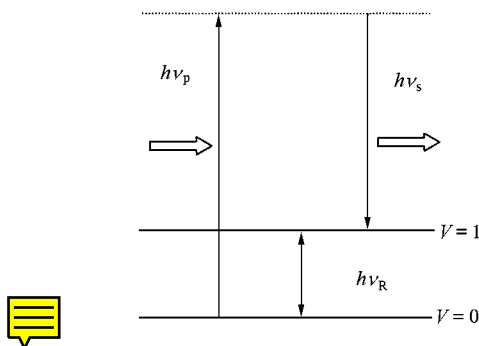


图 1 SRS 示意图

在准稳态的条件下^[8], 若抽运光耗散可忽略, 则输出的斯托克斯光的强度可表示为

$$I_s = I_s(0) e^{g_s I_p l}, \quad (1)$$

其中 $I_s(0)$ 为输入的斯托克斯光强度, 它可由自发辐射拉曼信号产生, I_p 为输入的抽运光强度, g_s 为稳态增益因子, l 取激光光束共焦参数 $b \left(b = \frac{\pi \omega_0^2}{\lambda} \right)$ 的 2

倍或拉曼管长度 l_p 的短者, ω_0 为拉曼管中激光光束的束腰半径.

当输出的斯托克斯光强度足够大时, 抽运光耗散就不可忽略. 这时, 输出的斯托克斯光强度的表达式要比 (1) 式复杂得多, 但 (1) 式作为定性分析是可以的.

在瞬态条件且高增益的情况下, 引入一个增益减少因子 $R^{[9]}$ 来描述瞬态增益因子 g_t

$$g_t = g_s R. \quad (2)$$

这种情况下输出的斯托克斯光的强度可近似表示为

$$I_s = I_s(0) e^{g_t l_p}. \quad (3)$$

由输出的斯托克斯光强度, 可算出输出的斯托克斯光能量为

$$E_s = \pi(\sqrt{2}\omega_0)^2 I_s = 2\pi\omega_0^2 I_s. \quad (4)$$

假设输入激光为高斯光束, 能量为 E_p , 透镜的焦距为 f , 甲烷气体的压强为 p_a , 透镜上的光斑半径为 $\omega(f)$, 在激光器到透镜距离 L 远大于透镜焦距 f 和拉曼管长度 l_p 大于共焦参数 b 的 2 倍情况下, 经过推导 (4) 式可变为

$$E_s = I_s(0) \frac{\pi\lambda^2}{\omega^2(f)} f^2 e^{\sqrt{2A_p P_a E_p / \lambda}}. \quad (5)$$

如果一阶斯托克斯光足够强, 那么它可以作为抽运光通过 SRS 过程来产生二阶斯托克斯光, 二阶足够强就可以产生三阶斯托克斯光, 依次类推. 这样的过程称为雪崩过程.

2.2. FWM 过程

FWM 过程也是一个三阶非线性过程. 通过 FWM 过程可产生二阶、三阶等高阶斯托克斯光和反斯托克斯光. 对于二阶斯托克斯光, 可有两个 FWM 过程产生, 如图 2 所示, 但过程 II 占主导地位, $k_i = \frac{2\pi n_i}{\lambda_i}$ 为第 i 阶斯托克斯光的波矢, Δk 称为波矢失配.

过程 I:

$$\Delta k = k_{s2} - (k_p + k_{s1} - k_{as1}). \quad (6)$$

过程 II:

$$\Delta k = k_{s2} - (2k_{s1} - k_p). \quad (7)$$

当拉曼管的长度 l_p 大于共焦参数 b 的 2 倍时, 由 FWM 过程产生的二阶斯托克斯光的能量 E_{s2} 可表示为^[10]

$$E_{s2} = B p_a^2 \exp(-b|\Delta k|), \quad (8)$$

式中 B 为比例常数, 与气体压强无关. 由 (6) 或 (7) 式可知, 波矢失配 Δk 的值在波长一定的情况下, 由

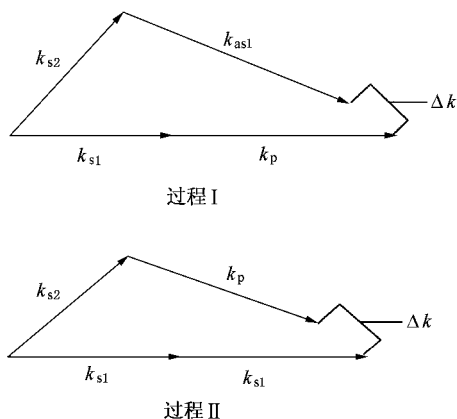


图 2 产生 S_2 的 FWM 示意图

激活介质的折射率决定, 而折射率的大小正比于介质的压力 $P_a^{[11]}$, 因此有 $b|\Delta k| = abp_a$, 其中 a 为比例常数. 将该关系式代入 (8) 式得

$$E_{s2} = B p_a^2 \exp(-abp_a). \quad (9)$$

根据 (9) 式可画出 $E_{s2} - p_a$ 的图像, 如图 3 所示. 图 3 中的曲线有一个极大值点, 在极大值点左侧曲线比较陡峭, 在极大值点右侧曲线相对平缓. 令 $\frac{dE_{s2}}{dp_a} = 0$,

则 E_{s2} 取得极大值对应的压强 p_a^* 为

$$p_a^* = 2/ab = \frac{2\pi\omega^2(f)}{a\lambda f^2}. \quad (10)$$

对 (10) 式变形可得

$$p_a^* f^2 = c. \quad (11)$$

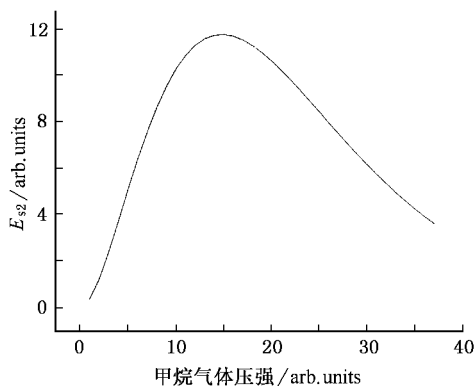
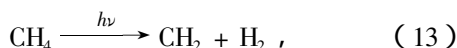
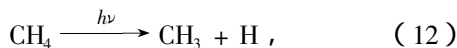
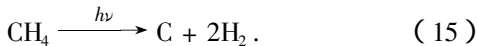
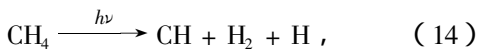


图 3 S_2 的能量与甲烷的压强关系

2.3. LID 和 LIB 过程

甲烷的 LID 光解初级过程有





用 266 nm 光照射甲烷时,上述过程中有的是单光子行为,有的是多光子行为.而过程(15)式是多光子过程,多光子行为对光强有很强的依赖性.

LIB 是介质吸引多光子电离后引起介质击穿的一种复杂行为.激光击穿的引发依赖于两个阶段:原初电子的产生和雪崩过程的建立^[12].气体介质的击穿光强就是由这两个过程所决定的.产生原初电子的来源主要有以下几个途径(1)气体中含有电离能较低的杂质原子或分子首先电离产生电子(2)气体多光子电离而产生的电子(3)由宇宙射线的作用而自然存在的电子(4)来自气溶胶粒子的热电离发射产生的电子.而雪崩过程的建立就是电子密度在激光脉冲宽度内要能达到击穿的临界值.

2.4.SBS 过程

SBS 过程是激光与介质中声子耦合而产生受激散射,这种声子与介质中密度变化直接有关,它起因于介质中的电致伸缩或吸收效应^[13].设介质中声波的传播速度为 v ,波矢为 k_b ,则其频率 ω_b 为

$$\omega_b = k_b v. \quad (16)$$

在频率为 ω_p 的入射激光照射下,产生 SBS 光子应满足能量守恒和动量守恒关系,由此可得不同散射角 θ 时的声波频率为

$$\omega_b = \frac{2\pi n \omega_p v}{c} \sin \frac{\theta}{2}. \quad (17)$$

由(17)式可知,前向($\theta = 0$)不存在 SBS,而后向($\theta = \pi$)SBS 频移量最大.

在稳态情况下,SBS 的增益因子 g_B 为

$$g_B = \frac{\omega_s \gamma_e^2 k_b}{8n^2 c^2 v \gamma_b \rho_0}, \quad (18)$$

式中 γ_e 为电致伸缩系数, γ_b 为 SBS 线宽, n 为折射率, ρ_0 为介质的初始密度.则输出的 SBS 光强度为

$$I_s = I_0 e^{g_B I_p l}. \quad (19)$$

2.5. 各过程之间的相互关联

FWM 过程要消耗一阶斯托克斯光来产生二阶斯托克斯光(如图 2 所示),FWM 过程是没有阈值条件的,但输出能量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、聚焦透镜的焦距就可以调控 E_{s1} 和 E_{s2} 的相对大小.若气压、

焦距满足(11)式,则 FWM 产生 S_2 占主导地位, E_{s2} 较大;若气压、焦距不满足(11)式,则 SRS 产生 S_1 占主导地位, E_{s1} 较大.在气压、焦距一定的情况下,增加(或减少)抽运光的能量,FWM 过程产生的 E_{s2} 和 SRS 过程产生的 E_{s1} 都同时增加(或减少).

LID 过程和 LIB 过程都可以使甲烷分子分解,从而产生碳自由基和碳离子,它们与窗口材料反应产生碳斑玷污窗口.一般杂质分子的离解能和电离能都比较低,当甲烷气体含有杂质成分时,它们总是首先被解离或电离,从而诱发甲烷气体击穿.一旦 LIB 过程产生,产生的等离子体将强烈吸收气体中激光,从而导致输出光强的急剧下降.即 LID 过程和 LIB 过程严重干扰 SRS 过程和 FWM 过程.LID 过程和 LIB 过程都是非线性过程,它们都强烈依赖于激光强度和初始电子的密度.因此,通过减少杂质和控制光强就可以抑制它们的产生.

SBS 过程也是消耗抽运光来产生 SBS 光,当然就会存在和 SRS 过程相互竞争的问题.SBS 过程具有较大的增益因子 g_B ,它的增益因子与 SRS 的增益因子 g_s 相当.对于气体介质而言,文献[9]给出两增益因子之比为

$$\frac{g_B}{g_s} = \frac{P_a}{40}. \quad (20)$$

通过控制气压,就可以控制抽运光能量在 SBS 过程和 SRS 过程之间的转换比例.

3. 实验装置

产生受激拉曼的实验装置如图 4 所示.Nd :YAG 激光器(Brilliant B 型,法国 Quantel 公司)经倍频晶体后输出波长为 266 nm 的抽运激光,单脉冲能量约为 50 mJ,脉冲宽度为 4 ns,发散角为 0.5 mrad,光束的半径约为 4 mm,重复频率为 20 Hz.抽运光经

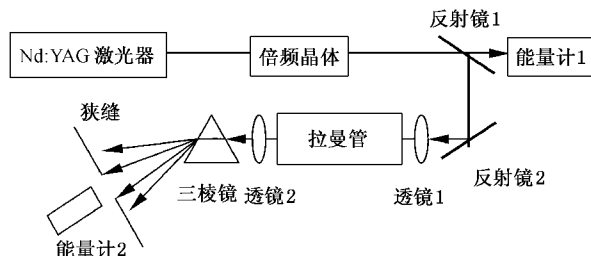


图 4 实验装置示意图

部分反射镜 1 后,一小部分光被能量计探测,以便监视抽运光能量的变化,绝大部分光被全反射镜 2 反射后,经聚焦透镜 1 会聚于拉曼管中,透镜 2 准直输出的抽运光和各阶斯托克斯光,它与透镜 1 构成共焦体系.拉曼管为长 1 m,内径 14 mm 的不锈钢管.三棱镜将输出的各种波长光色散开,能量计 2 与狭缝配合可以测不同波长光的输出能量.

实验中首先分别用三种聚焦透镜($f = 88, 70, 50$ cm)把抽运光会聚于拉曼管中,在抽运光能量一定的情况下,测各阶输出能量与气压之间的关系.然后选三种不同的气压(选取的标准是 SRS 占主导地位、SRS 与 FWM 相当、FWM 占主导地位),测各阶输出能量与输入能量之间的关系.实验中每一个数据取 400 个脉冲的平均值.

4. 实验结果及讨论

各阶输出能量与聚焦透镜的焦距 f 及拉曼管内的甲烷气压关系如图 5 所示,各阶输出能量与输入能量的关系如图 6 所示.

从图 5 可以看出,随着 f 的减小, E_{s1} 也随之减小,即 E_{s1} 与 f 的关系定性地满足(5)式的结论.

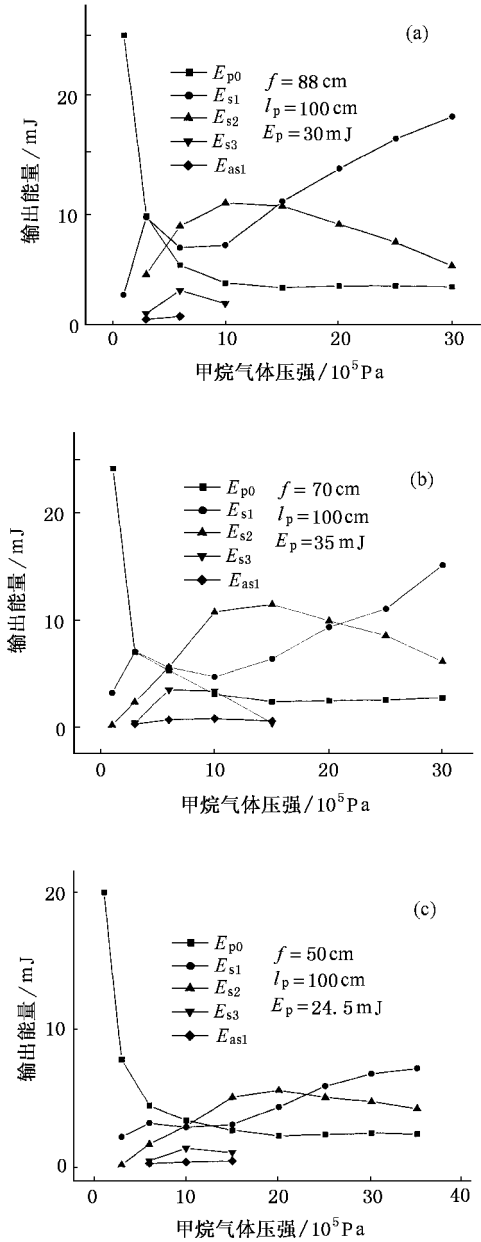


图 5 三种焦距情况下的各阶输出能量与压强关系 (a) $f = 88$ cm (b) $f = 70$ cm (c) $f = 50$ cm

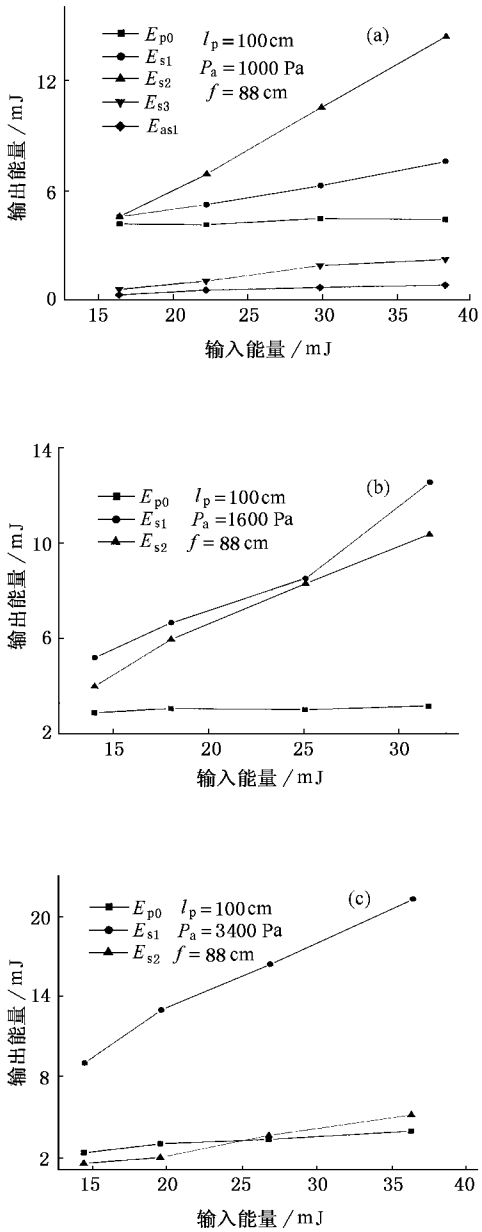


图 6 三种压强情况下各阶输出能量与输入能量关系 (a) $p_a = 1000$ Pa (b) $p_a = 1600$ Pa (c) $p_a = 3400$ Pa

在图 5 的三幅图中 ,FWM 过程和 SRS 过程之间的竞争变得一目了然 ,即 E_{s2} 增加时 , E_{s1} 减少 ; E_{s2} 减少时 , E_{s1} 增加 . E_{s2} 有一个峰值且左边较陡右边较平缓 ,这与图 3 是一致的 .对 E_{s2} 取得极大值对应的气压 p_a^* 和聚焦透镜焦距 f 的实验数据计算表明 ,它们之间的关系定性满足(11)式的结论 ,即 $f^2 p_a^*$ 约为常数 .

图 6 为各阶输出能量与输入能量的关系 .随着输入能量 E_p 的增加 ,第一阶斯托克斯线 S_1 的能量和第二阶斯托克斯线 S_2 的能量也跟着增加 ,但不完全满足(5)式中与 E_p 的平方根成指数的定量关系 ,而是近似的线性关系 .在图 6 中 ,聚焦透镜的焦距为 88 cm ,当焦距为 70 和 50 cm 时 ,各阶输出能量与输入能量的关系与图 6 是相似的 ,但焦距 f 越大输出各阶能量就相对较大 ,并且各阶输出能量之和占输入能量的比值也越大 .聚焦透镜的焦距为 88 ,70 ,50

cm 三种情况下 ,各阶输出能量之和占输入能量的比值分别约为 90% ,70% ,60% .

5. 结 论

用非线性光学理论分析拉曼管内发生的各种非线性现象 ,得出了 SBS 过程、FWM 过程、LID 过程、LIB 和 SRS 过程的规律以及它们之间的相互关系 .通过实验对上述结论进行检验 ,发现实验结果定性地与理论相符合 .根据理论分析和实验结果 ,可知加强 SRS 过程的方法有 :调控聚焦透镜的焦距 f 和甲烷气体的压强 p_a ,以抑制 FWM 过程 ;提高拉曼管内的气体纯度 ,降低杂质的含量 ,防止 LID 和 LIB 过程的发生 ;控制甲烷气体的压强 ,以减少 SBS 过程的竞争力 ,提高抽运光的能量等 .我们正在把该实验结果用于激光雷达中 ,以探测大气中二氧化硫、臭氧的含量 .

- [1] Yan J X , Gong S S , Liu Z S 2001 *Lidar in Environment Monitoring* (Beijing : Science Press) [in Chinese] p135 [阎吉祥、龚顺生、刘智深 2001 环境监测激光雷达(北京 :科学出版社)第 135 页]
- [2] Hinkley E D 1976 *Laser Monitoring of the Atmosphere* (Berlin : Springer-Verlag) p247
- [3] Wu Y H , Yue G M , Hu H L *et al* 2000 *Chin. J. Lasers* **27** 823 (in Chinese) [吴永华、岳古明、胡欢陵等 2000 中国激光 **27** 823]
- [4] Spinhirn J D , Chudamanj S , Cavanaugh J F *et al* 1997 *Appl. Opt.* **36** 3475
- [5] Wang Y G , Si J H , Yang Q G *et al* 1997 *Chin. Phys.* **6** 504
- [6] Zhang Y P , Wu H Z , Wang P F *et al* 2000 *Chin. Phys.* **9** 599
- [7] Xu B , Yue G M , Zhang Y C *et al* 2003 *Chin. Phys.* **12** 1021

- [8] Sentrayan K , Major L , Michael A *et al* 1992 *Appl. Phys. B* **55** 311
- [9] Scoulepnikoff L , Mitev V , Simeonov V *et al* 1997 *Appl. Opt.* **36** 5026
- [10] Bjorklund G C 1975 *IEEE J. Quantum Electron.* **QE-11** 287
- [11] Mahon R , McIlrath T J , Myerscough V P *et al* 1979 *IEEE J. Quantum Electron.* **QE-15** 444
- [12] Shen Y R 1987 *Principle of Nonlinear Optics* (Beijing : Science Press) p215 (in Chinese) [沈元壤 1987 非线性光学原理(下册)北京 :科学出版社]第 215 页]
- [13] Qian S X 2001 *Nonlinear Optics——Principle and Evolution* (Shanghai : Fudan University Press) p170 (in Chinese) [钱士雄 2001 非线性光学——原理与进展(上海 :复旦大学出版社)第 170 页]

Effect of stimulated Raman scattering pumped by fourth harmonic Nd :YAG laser in methane and analysis of its physical processes

Tao Zong-Ming Zhang Yin-Chao Lü Yong-Hui Hu Shun-Xing Shao Shi-Sheng

Cao Kai-Fa Liu Xiao-Qin Yue Gu-Ming Hu Huan-Ling

(*Key Laboratory of Atmospheric Optics , Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics , Chinese Academy of Sciences , Hefei 230031 , China*)

(Received 17 October 2003 ; revised manuscript received 24 December 2003)

Abstract

This paper analyzes theoretically various nonlinear phenomena caused by focusing a laser beam into high-pressure gas , and the interaction and interference produced , measures the relationship among output energy , input energy , gas pressure and focal length when the fourth harmonic Nd :YAG laser is focused into the Raman cell filled with methane. Experimental results are in agreement with theoretical ones qualitatively. Based on these we can optimize and use the stimulated Raman scattering.

Keywords : nonlinear process , stimulated Raman scattering , four wave mixing , laser induced dissociation

PACC : 4265 , 7830