

HIỆU ỨNG RAMAN TRỘN BỐN SÓNG TRONG MÔI TRƯỜNG KHÍ

Nguyễn Mạnh Thắng¹, Nguyễn Văn Hào^{2,3}, Vũ Dương^{3*}, Đỗ Quang Hòa³

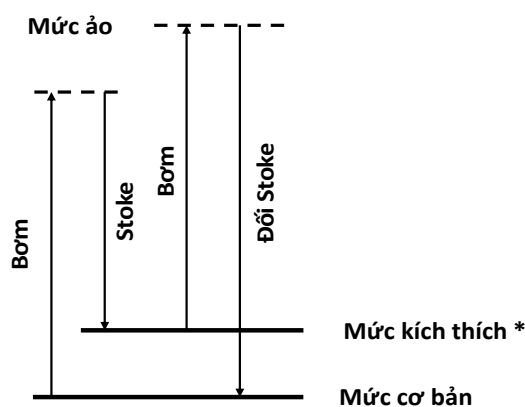
Tóm tắt: Trong nghiên cứu này, chúng tôi giới thiệu phương pháp phát laser xung ngắn trong toàn bộ vùng tử ngoại sâu – nhìn thấy (DUV-VIS) dựa trên hiệu ứng Raman trộn bốn sóng trong môi trường khí. Do khoảng cách giữa các mức năng lượng dao động lớn ($\sim 4166 \text{ cm}^{-1}$ từ $v=1$ sang $v=0$), hydro được chọn làm môi trường Raman. Xung bơm (800 nm), xung Stokes (1200 nm) kích thích cộng hưởng các phân tử khí lên mức dao động trên. Do thời gian hồi phục pha dao động của các phân tử khí là lớn hơn nhiều lần so với độ rộng xung kích thích, xung bơm tương tác tức thời với các phân tử khí ở mức năng lượng trên và phát ra xung đối Stokes. Xung Stokes tiếp tục tương tác với các phân tử khí đã được kích thích và tán xạ ra các photon có mức năng lượng cao hơn tương ứng với các vạch đối Stoke bậc cao (hiện tượng thác lũ). Tại áp suất 196 kPa, hiệu ứng thác lũ cho phép phát vạch Raman đối Stoke đến bậc 8 (218 nm). Các xung ánh sáng này có ý nghĩa ứng dụng lớn trong các nghiên cứu quang phổ, quang phổ phân giải thời gian v.v... Do các vạch đối Stoke là phù hợp về pha, sử dụng các kỹ thuật khử tán sắc, chongchập về mặt thời gian cho phép tạo ra các chuỗi xung cực ngắn, một vài femto giây.

Từ khóa: Hiệu ứng Raman, Hiệu ứng Raman đối Stokes, Laser xung cực ngắn, Femto giây, Quang học phi tuyến.

1. GIỚI THIỆU

Hiện nay, có nhiều phương pháp đã được chứng minh để phát những xung laser cực ngắn (cỡ femto giây) trong vùng tử ngoại sâu (DUV), chẳng hạn như biến đổi tần số từ vùng nhìn thấy hay vùng hồng ngoại gần sang vùng DUV dựa vào sự phát siêu liên tục (supercontinuum) [1], phát hòa ba bậc ba và bậc bốn [2-4], trộn bốn sóng (FWM) [5, 6]... Các xung sáng ngắn như vậy đóng một vai trò rất quan trọng trong nghiên cứu quang phổ học như nghiên cứu các quá trình động học của phân tử ở pha khí và lỏng [7-9], phân tích dấu vết của các hợp chất hữu cơ [10-12]. Đối với các nguồn ánh sáng thường, cường độ yếu, các hiện tượng quang học chủ yếu là hiện tượng quang học tuyến tính. Đối với các xung ánh sáng có cường độ cao (xung laser dưới nano giây) hiện tượng quang học phi tuyến xảy ra khá phổ biến. Với độ dài xung trong vùng femto giây, cường độ điện trường tại đỉnh xung là rất lớn, các hiện tượng phi tuyến bậc cao trở nên rõ rệt.

Hiệu ứng Raman FWM dựa trên đáp ứng phi tuyến bậc ba của môi trường khí tương tác với trường điện từ ngoài. Hai photon ánh sáng tới (photon bơm và Stoke) tương tác với



(*): Mức dao động hoặc xoay

Hình 1. Hiệu ứng Raman trộn bốn sóng.

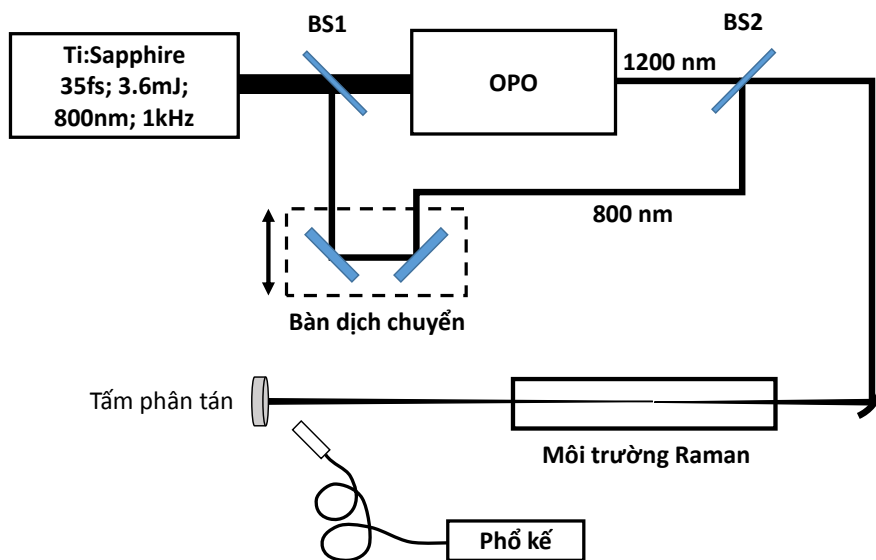
phonon dao động của môi trường, tán xạ ra photon thứ tư với năng lượng tương ứng của vạch đối Stoke trong phổ Raman của phân tử môi trường [13]. Trong nghiên cứu này, môi trường Raman khí được tập trung nghiên cứu do có độ tán sắc thấp, không bị cạnh tranh bởi các hiệu ứng phi tuyến khác (tự điều biến pha, điều biến pha chéo ...).

Quá trình phát Raman FWM được mô tả trong hình 1. Cặp xung bơm và Stoke đồng thời kích thích phân tử của môi trường Raman lên mức dao động trên. Do thời gian suy giảm về pha dao động của môi trường khí (trong vùng pico giây) là dài hơn rất nhiều so với xung kích thích, xung bơm tương tác một cách tức thời với các phân tử khí đã được kích thích và tán xạ dưới dạng các photon đối Stoke. Các photon đối Stoke tiếp tục tương tác với phân tử hydro ở mức dao động trên và hình thành hiện tượng thác lũ, qua đó tán xạ liên tiếp các vạch dao động đối Stoke bậc cao hơn [14].

Trong nghiên cứu này, chúng tôi tiến khảo sát điều kiện áp suất khí tối ưu hướng tới phát các xung laser cực ngắn trong vùng DUV, dựa trên hiệu ứng Raman FWM. Mật độ phân tử khí của môi trường Raman tăng dần tới thiết diện tán xạ tăng và hiệu suất phát các xung đối Stoke tăng. Tuy nhiên, ở áp suất cao, hiện tượng tán sắc ảnh hưởng tới chiều dài cộng hưởng (điều kiện phù hợp pha) đặc biệt với các xung đối Stoke tần số cao. Vì vậy, nghiên cứu tối ưu điều kiện để xảy ra hiện tượng thác lũ là rất cần thiết.

2. THÍ NGHIỆM

Sơ đồ thí nghiệm được miêu tả trong hình 2.



Hình 2. Sơ đồ thí nghiệm phát Raman trộn bốn sóng.

Nguồn cơ bản được phát bởi laser Ti:Sapphire (Coherent), độ rộng xung 35 fs, công suất 3,6 mJ, tần số lặp lại 1 kHz, tại bước sóng 800 nm. Chùm cơ bản được tách làm hai chùm bởi tấm chia chùm BS1 (1:5). Phần năng lượng nhỏ hơn được dùng làm xung bơm cho hệ trộn bốn sóng. Phần lớn năng lượng (3 mJ) được dùng làm nguồn bơm cho hệ dao động phát thông số (OPO - Coherent). Hệ OPO được thiết lập với xung ra tại bước sóng

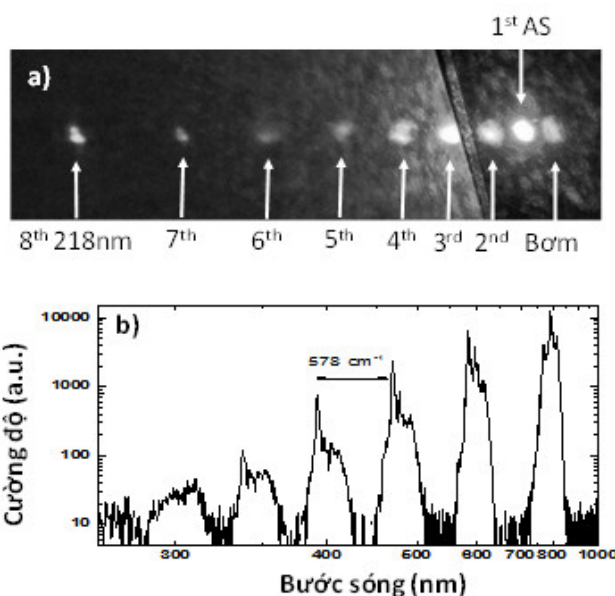
1200 nm (xung Stoke), công suất 500 μJ . Độ trễ giữa hai xung được tối ưu bằng một bàn dịch chuyên bố trí trên đường truyền quang của xung bơm. Sau khi chông chập về mặt không gian, cặp xung được hội tụ bằng gương cầu MC1, tiêu cự 1 m, vào môi trường Raman là một ống trụ dài 1 m chứa khí hydro (xuất xứ Trung Quốc – 99,997 %). Khí hydro được sử dụng trong thí nghiệm này do có độ tán sắc thấp ở vùng DUV, đồng thời, có năng lượng tách dao động đặc trưng lớn (578 cm^{-1}), phù hợp với mục đích phát các xung ánh sáng trong vùng DUV. Áp suất trong ống khí được đo và điều khiển từ 7 kPa đến 196 kPa bằng (đầu đo AP-40 (Kayence)). Tín hiệu sau môi trường Raman được phân tích bằng phổ kế cầm tay USB-Maya Pro2000 (Ocean Optic).

3. KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN

Hình 3.a là phổ tán sắc của xung ánh sáng sau môi trường Raman sử dụng lăng kính fused-silica. Xung Stoke không quan sát được do nằm ngoài vùng nhạy quang của thiết bị ghi hình.

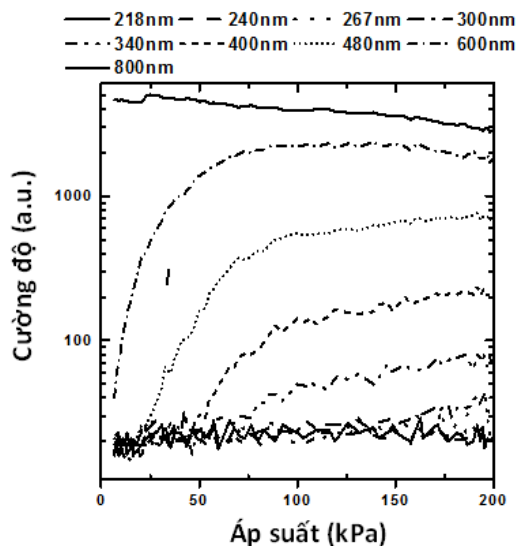
Trong hình 3.b, đặc trưng phổ của tín hiệu được biểu diễn theo thang lôgarít. Các vạch đối Stoke có đỉnh nằm cách nhau các mức năng lượng bằng đúng với chuyển mức năng lượng dao động thấp nhất của phân tử khí hydro trong môi trường. Cường độ đỉnh của các vạch đối Stoke giảm theo hàm mũ tự nhiên. Đây là đặc trưng cơ bản của hiện tượng thác lũ. Trong tương tác cộng bốn sóng, tín hiệu đối Stoke chỉ đóng góp một photon để tán xạ photon đối Stoke lân cận có năng lượng cao hơn. Hiệu suất của quá trình thác lũ phát đối Stoke được đánh giá bằng độ suy giảm cường độ của các đỉnh đối Stokes.

Cường độ đỉnh của tín hiệu bơm có độ suy giảm lớn do xung bơm đóng góp một photon trong tất cả các quá trình phát vạch Stoke bậc một và các vạch đối Stoke bậc cao. Cường độ tín hiệu vùng UV suy giảm nhanh do nằm ngoài vùng đáp ứng quang của phổ kế. Tuy vậy, trong hình 3.a, vạch đối Stoke bậc 8 tại bước sóng 218 nm có thể ghi nhận được khi sử dụng bột phát huỳnh quang (sodium salicylate). Với đặc trưng phổ gồm các vạch phổ cách đều liên tiếp trong vùng DUV-VIS, sử dụng các kỹ thuật khử tán sắc và chông chập về mặt thời gian sẽ cho phép biến đổi tín hiệu này thành một chuỗi các xung cực ngắn có độ rộng đơn xung cỡ vài femto giây [15].



Hình 3. Phổ của xung ánh sáng xung cực ngắn sau môi trường Raman. a) Phổ tán sắc ghi nhận sau lăng kính fused-silica. b) Phổ ghi nhận bằng phổ kế USB-Maya Pro2000.

Trong vùng áp suất thí nghiệm được thiết kế (7 kPa – 196 kPa), chúng tôi nhận thấy tín hiệu Raman tại mọi vạch đối Stoke tăng theo áp suất của môi trường (Hình 4). Khi cường độ một vạch đối Stoke ngừng tăng, cho thấy một phần photon ở bước sóng này đã tham gia vào quá trình thác lũ, tán xạ ra photon đối Stoke lân cận. Quá trình này được thể hiện qua sự tăng dần về cường độ và lần lượt đạt mức bão hòa của các vạch đối Stoke bậc cao. Kết quả này có ý nghĩa quan trọng trong các ứng dụng sử dụng một vạch đối Stoke. Tại áp suất phù hợp, có thể tối ưu hiệu suất phát vạch đối Stoke tương ứng.



Hình 4. Cường độ tín hiệu đối Stokes phụ thuộc áp suất môi trường Raman.

Trong vùng tử ngoại chân không, cường độ vạch đối Stoke bậc 7 tăng tuyến tính theo áp suất môi trường Raman. Có thể kết luận hiệu suất phát xung đối Stoke bậc 8 là rất thấp. Cường độ xung bơm và xung Stoke thấp là một nguyên nhân chính. Mặt khác, tại vùng bước sóng tử ngoại, hiện tượng tán sắc ánh sáng của xung cực ngắn khi truyền qua môi trường trở nên rõ rệt hơn. Khi áp suất môi trường tăng, các xung đối Stoke bậc cao bị tán sắc dẫn đến điều kiện phù hợp pha không còn thỏa mãn, giảm hiệu suất trộn bốn sóng trong môi trường. Hạn chế này có thể khắc phục bằng việc sử dụng các ống dẫn sóng (Hollow Capillary – HC), ống dẫn sóng quang tử (Photonic Crystal Fiber - PCF). Các thiết bị này có khả năng tăng quãng đường cộng hưởng (Coherent Length – L_c) mà không đòi hỏi tăng áp suất của môi trường, giảm hiệu ứng tán sắc.

4. KẾT LUẬN

Hiện tượng Raman trộn bốn sóng trong môi trường khí được khảo sát phụ thuộc vào áp suất môi trường. Tại điều kiện tối ưu, 196 kPa, có thể thu được vạch đối Stoke tại bước sóng 218 nm. Đây là nghiên cứu thực nghiệm cơ bản cho phép nắm bắt, tối ưu hóa hiệu suất chuyển đổi xung ánh sáng cơ bản tại bước sóng 800 nm thành các xung ánh sáng cực ngắn trên toàn dải DUV-VIS. Nguồn sáng cực ngắn này có ý nghĩa ứng dụng quan trọng trong các nghiên cứu quang phổ phân giải thời gian (thời gian sống huỳnh quang, phản ứng quang hóa...) và các nghiên cứu y sinh (kính hiển vi huỳnh quang, kính hiển vi hai photon...).

Tại vùng DUV, hiệu suất chuyển đổi là rất thấp do hiệu ứng tán sắc tăng theo áp suất của môi trường Raman. Hướng nghiên cứu tiếp theo sử dụng ống dẫn quang hoặc sợi quang tử có khả năng nâng cao hiệu suất chuyển đổi của hiệu ứng trộn bốn sóng tại vùng bước sóng này.

Lời cảm ơn: Chúng tôi xin chân thành cảm ơn Đề tài Nafosted Mã số 103.06-2011.07 đã tài trợ cho công trình này.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

- [1]. S.A. Trushin, K. Kosma, W. Fuß, W.E. Schmid, Opt. Lett. **32**, (2007)2432
- [2]. F. Reiter, U. Graf, M. Schultze, et al., Opt. Lett. **35**, (2010)2248
- [3]. M. Ghotbi, P. Trabs, M. Beutler, Opt. Lett. **36**, (2011)463
- [4]. P. Baum, S. Lochbrunner, E. Riedle, Opt. Lett. **29**, (2004)1686
- [5]. C.G. Durfee III, S. Backus, H.C. Kapteyn, M.M. Murnane, Opt. Lett. **24**, (1999)697
- [6]. Y. Kida, J. Liu, T. Teramoto, T. Kobayashi, Opt. Lett. **35**, (2010)1807
- [7]. K. Kosma, S.A. Trushin, W. Fuß, W.E. Schmid, Phys. Chem. Chem. Phys. **11**, (2009)172
- [8]. S. Kahra, G. Leschhorn, M. Kowalewski, A. Schiffrin, et al., Nat. Phys. **8**, (2012)238
- [9]. T. Kobayashi, Y. Kida, Phys. Chem. Chem. Phys. **14**, (2012) 6200
- [10]. T. Shimizu, Y. Watanabe-Ezoe, S. Yamaguchi, H. Tsukatani, T. Imasaka, et al., Anal. Chem. **82**, (2010)3441
- [11]. R. Ezoe, T. Imasaka, T. Imasaka, Anal. Chim. Acta **853**, (2015)508
- [12]. A. Hamachi, T. Okuno, T. Imasaka, Y. Kida, T. Imasaka, Anal. Chem. **87**, (2015)3027
- [13]. S. Yoshikawa and T. Imasaka, Opt. Commun. **96**, (1993) 94.
- [14]. H. Kawano, Y. Hirakawa, and T. Imasaka, J. Appl. Phys. B, (1997), **65**, 1
- [15]. G. Korn, O. Dühr, and a. Nazarkin, Phys. Rev. Lett., vol. **81**, (1998) 1215–1218.

ABSTRACT

FOUR WAVE MIXING RAMAN SCATTERING IN GAS MEDIUM

In this study, we have generated multi-colors ultrafast optical pulses from vacuum ultraviolet region to visible region based on Four Wave Raman Mixing process. Because of having a large different energy between vibration level ($\sim 4166 \text{ cm}^{-1} \nu=1 \rightarrow \nu=0$), Hydrogen has been selected as the Raman medium. The pump (800 nm) and the Stokes (1200 nm) beams coherently excite hydrogen molecules to the higher vibration energy level. Because the dephasing time of gas molecule is much longer than the excitation pulse width, the pump beam has high probability to interact with excited gas molecule, i.e. generates a new photon at anti-Stokes line. The cascade process can also happen which generates multi-color higher order anti-Stokes sideband. At 196 kPa, the 8th anti-Stoke line was observed. These ultrashort optical pulses have high potential to be used in spectroscopy analysis, time analysis. Since all anti-Stoke sidebands are phase locked, we expect that we can compress the multi-color beam to few-cycle pulses in visible region.

Keywords: Raman effect, Anti-Stokes Raman effect, Ultrafast laser, Femtosecond, Nonlinear optics.

Nhận bài ngày 26 tháng 10 năm 2016

Hoàn thiện ngày 14 tháng 12 năm 2016

Chấp nhận đăng ngày 14 tháng 12 năm 2016

Địa chỉ: ¹ Viện Khoa học và Công nghệ quân sự, 17 Hoàng Sâm, Hà Nội;

² Trường Đại học Khoa học Thái Nguyên, Phường Tân Thịnh, TP. Thái Nguyên;

³ Viện Vật lý, Viện Hàn lâm KH-CN Việt Nam, 18 Hoàng Quốc Việt, Hà Nội;

* Email: duongvu@iop.vast.ac.vn