

[美]

A. 穆拉迪安 T. 耶格 P. 斯托克塞思 编

可调谐激光器 及应用

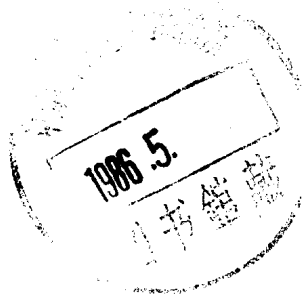
科学出版社

73.7719
898

可调谐激光器及应用

〔美〕 A. 穆拉迪安 T. 耶格 P. 斯托克塞思 编

张 明 鲍贤杰 毛韵雅 译
程文芹 校



科 学 出 版 社

1986

8610421

1036/660

内 容 简 介

本书为联邦德国斯普林格出版社光学丛书的第三卷。书中选编了可调谐激光器及其应用国际会议报告 35 篇。报告的内容极为广泛,包括从真空紫外至远红外的各种可调谐激光器及其在光化学、化学动力学、同位素分离、大气光化学及环境研究、光生物学及光谱学方面的应用。报告中详细介绍了可调谐激光器的特性、结构和现状及其在上述学科和领域中的可贵应用及迅速进展,还对一系列技术问题作了深入全面的分析。

本书可供从事激光及其应用的科技人员和高等院校有关专业的师生阅读和参考。

A. Mooradian T. Jaeger P. Stokseth
TUNABLE LASERS AND APPLICATIONS
Springer-Verlag 1976

可调谐激光器及应用

[美] A. 穆拉迪安 T. 耶格 P. 斯托克塞思 编

张 明 鲍贤杰 毛韵雅 译

程文尧 校

责任编辑 刘海龄

科学出版社出版

北京朝阳门内大街 137 号

中国科学院印刷厂印刷

新华书店北京发行所发行 各地新华书店经售

*

1986 年 2 月第 一 版 开本: 787×1092 1/32

1986 年 2 月第一次印刷 印张: 15 3/8

印数: 0001—2,200 字数: 351,000

统一书号: 15031·697

本社书号: 4239·15—4

定价: 3.60 元

1036/660

前 言

可调谐激光器及其应用会议于1976年6月6日至11日在挪威的卢恩举行。这次会议讨论了从真空紫外到远红外的可调谐激光器技术及其在光化学、化学动力学、同位素分离、大气光化学及环境研究、光生物学及光谱学方面的应用。由于可调谐激光器在一些学科的许多领域内应用的迅速扩大，因而有必要召开这次会议。

代表日本、意大利、联邦德国、加拿大、以色列、法国、英国、挪威、瑞典、巴西、丹麦、芬兰、荷兰、苏联和美国的130位科学家出席了这次会议。

会议地点选在诺尔峡湾的卢恩，因为这里水蓝色的峡湾周围有冰河覆盖的山岭和青葱翠绿的山腰，宏伟壮丽。亚历山大旅馆以其第一流的服务质量、高级的瑞典餐餚和优良的视听装置，成为这次会议的理想场所。气氛使人心旷神怡，易于轻松愉快地交换意见。午后安排去布里克斯达尔冰河散步，而最精彩的外出活动则是乘汽车或坐船去雄伟壮观的盖兰格峡湾游览。一次豪华的宴会之后，紧接着由国际商用机器公司的哈罗德·埃杰顿教授对高速及水平照相问题作了一次饶有风趣并引人入胜的谈话。

感谢我们会议发起者的财经支援，以此促使这次会议开得圆满成功。

阿拉姆·穆拉迪安

泰乔·耶格

珀·斯托克塞恩

1976.9

目 录

前言

I. 可调谐及高能紫外-可见光激光器	1
1. 可调谐真空紫外相干辐射... B. P. Stoicheff, S. C. Wallace	1
2. 高效率紫外激光器	J. J. Ewing, C. A. Brau 19
3. 可调谐真空紫外准分子激光系统.....	
..... D. J. Bradley, M. H. R. Hutchinson, C. C. Ling	40
4. 染料激光技术.....	F. P. Schäfer 50
II. 可调谐红外激光系统	61
1. 可按比例缩放的可调谐红外激光器.....	A. Mooradian 61
2. 参量振荡器.....	R. L. Byer 72
3. 分子气体中产生的可调谐红外辐射	
..... J. Ducuing, R. Frey, F. Pradère	84
4. 可调谐高功率喇曼激光器及其应用	
..... A. Z. Grasiuk, I. G. Zubarev	92
5. 对 UF ₆ 分离铀同位素用的高效率、高功率 8.62 μ m 红外辐射源	
..... R. L. Aggarwal, N. Lee, B. Lax	101
III. 同位素分离及激光激发化学反应	106
1. 表面激光化学.....	M. S. Djidjoev, R. V. Khokhlov, A. V. Kiselev, V. I. Lygin, V. A. Namiot, A. I. Osipov, V. I. Panchenko, B. I. Provotorov 106
2. 甲醛的光物理及光化学	A. P. Baronavski,
A. Cabello, J. H. Clark, Y. Haas, P. L. Houston, A. H. Kung, C. B. Moore, J. Reilly, J. C. Weisshaar, M. B. Zughul	115
3. 选择性激光物理及激光化学的未来应用.....	V. S. Letokhov 129
4. 铀同位素分离及其对激光器研制的要求	S. Rockwood 149

IV. 分子的非线性激发	161
1. 强红外激光场作用下多原子分子的离解	R. V. Ambartsumian 161
2. 多光子红外吸收引起的多原子分子无碰撞离解	N. Bloembergen, C. D. Cantrell D. M. Larsen, 174
3. 分子通过激光激发至高振动态的问题	 K. L. Kompa 192
4. 六氟化硫的双共振和能量转换	J. I. Steinfeld, C. C. Jensen 207
V. 激光动力学	210
1. 激光感应碰撞	 S. E. Harris, R. W. Falcone, W. R. Green, D. B. Lidow, J. C. White, J. F. Young 210
2. 用微微秒激光脉冲确定液体中多原子分子的振动时间常数	 W. Kaiser, A. Laubereau 224
3. 激光频率开关引起的相干光瞬变	 R. G. Brewer, A. Z. Genack 236
4. 宏观系统的弛豫: 一种信息论的方法	 R. D. Levine 243
VI. 大气光化学及诊断学	256
1. 对流层光化学和光物理过程	 J. N. Pitts, Jr., B. J. Finlayson-Pitts 256
2. 同温层光化学	 H. S. Johnston 282
3. 采用可调谐激光器的遥感技术	 K. W. Rothe, H. Walter 310
VII. 光生物学	325
1. 共振喇曼光谱学: 可调谐激光器对分子结构与视觉激发动力学研究的应用	R. Mathies, A. R. Oseroff, T. B. Freedman, L. Stryer 325
2. 生物分子的激光感生荧光	A. Andreoni, A. Longoni, C. A. Sacchi, O. Svelto, G. Bottiroli 336
3. 应用于生物高聚物动力学与结构的荧光光谱分析法	 M. Ehrenberg, R. Rigler 348
VIII. 可调谐激光器的光谱学应用	362

1. 高分辨率激光光谱学的应用.....	T. W. Hänsch	362
2. 远红外激光应用.....	B. Lax	379
3. 可调谐激光光谱学在探矿中的应用...	S. T. Eng, E. Max	388
4. 使用可调谐参量振荡器在非线性薄膜波导中产生光学二次谐波的相位匹配特性的研究.....	H. Ito, H. Inaba	393
5. 连续波染料激光器的控制技术.....	J. L. Hall, S. A. Lee	405
6. 光泵浦气体激光器.....	H. Kildal, T. F. Deutsch	413
7. 相干反斯托克斯喇曼散射技术及其应用.....	J. P. Taran	426
8. 测量分子参量用的相干激活喇曼光谱学(CARS)的发展.....	S. A. Akhmanov, A. F. Bunkin, S. G. Svanov, N. I. Korotcey, A. I. Kovrigin, I. L. Shumay	439
参考文献.....		449

I. 可调谐及高能紫外-可见光激光器

1. 可调谐真空紫外相干辐射

B.P.Stoicheff, S.C.Wallace

I. 引 言

产生真空紫外相干辐射的直接途径,当然需要研制合适的激光器。在这个波段内激光器的研究工作取得了相当大的进展,如表1所示。1970年氢分子成为 $1600\text{ \AA}$ 波长区激光辐射的第一种介质^[1],进一步的研究又将辐射波长扩展到 $1100\text{ \AA}$ ^[2]。这样一些激光器能产生 $1098\text{ \AA}$ — $1644\text{ \AA}$ 波长范围内数百种不同波长的辐射。一氧化碳也提供 1811 至 $1970\text{ \AA}$ 内的多谱线输出^[3],离化的碳(CIV)则产生 1548 及 $1551\text{ \AA}$ 的双共振线辐射^[4]。 Xe_2 、 Kr_2 及 Ar_2 分子经过解离,可提供中心波长分别为 $1726\text{ \AA}$ 、 $1457\text{ \AA}$ 、 $1261\text{ \AA}$ 的宽带高输出功率^[5]。这些发射均可在 1000 — 1500 cm^{-1} 范围内调谐,其中Xe已经取得了一定成效^[6]。目前,准分子激光器系列中又增添了 ArF ,其辐射波长为 $1940\text{ \AA}$ ^[7]。我们希望通过这次会议的几篇论文搞清这些激光器的现状。

1961年 Franken 等人观察到红宝石激光($6944\text{ \AA}$)射至石英晶体上,产生了 $3472\text{ \AA}$ 二次谐波辐射^[8],由此为产生紫外及真空紫外区相干辐射开辟了崭新的重要方向。紧接着在

• 1 •

8610421

1962 年, Armstrong 等人发表了关于二次及三次非线性极化率的经典理论论文^[9], Giordmaine 及 Maker 等人用双折射定向晶体完成了折射率匹配的优秀实验工作, 获得了高转换效率. 1963 年 Maker 等人证实, 用红宝石激光可在晶体、玻璃、液体中产生 $2314 \text{ \AA}$ 三次谐波^[11], 而 Maker 及 Terhune 证实了凝聚物的其它重要的三次非线性效应^[12]. 产生更短波长的一个主要问题在于很多非线性固体对波长短于 $\sim 2000 \text{ \AA}$ 的区域透明性很差.

1967 年 NEW 及 Ward 在大量原子及双原子的气体中产生了三次谐波辐射, 有成效地解决了这个问题^[13]. Harris 及他的同事们建议^[14]并证实了^[15], 用相位匹配金属蒸汽作非线性介质能得到三次谐波及和频混频的高转换效率. 他们成功地获得了下列相干辐射: 用 Cd:Ar 得到 $1182 \text{ \AA}$ 的相干辐射^[16], 用 Ar 得到 $886 \text{ \AA}$ 的相干辐射^[17], 并在 Xe 气体中进行非线性混频, 得到了真空紫外区的可调谐微微秒辐射^[18]. Miles 及 Harris 对三次极化率所作的详细计算表明, 如果入射辐射频率调谐到金属蒸汽中的单光子、双光子、三光子的允许跃迁, 则可实现附加增强^[19]. Bloom 等人在 Na 中用可见光辐射与红外辐射进行混频 ($2\omega_1 + \omega_2$ 产生 ω_3) 在 $3321 \text{ \AA}$ 观察到这种共振增强^[20]. Leung 等人用红宝石激光辐照 Cs 获得了三次谐波^[21]. 1974 年 Hodgson 等人报道了在 Sr 蒸汽中以四波和频混频法 ($2\omega_1 + \omega_2 \rightarrow \omega_3$) 也可实现可调谐真空紫外辐射的共振增强^[22]. 他们采用了两个可调谐染料激光器, 一个调谐到允许双光子跃迁, 另一个调谐到使 $2\omega_1 + \omega_2$ 对应于由基态到电离态的跃迁, 而且成功实现了 $1778-1817 \text{ \AA}$ 及 $1833-1957 \text{ \AA}$ 的连续可调谐辐射. 多伦多大学用类似方法在 Mg 蒸汽中得到了 $1400 \text{ \AA}-1600 \text{ \AA}$ 的可调谐辐射^[23], 而最近又扩展到 $\sim 1200 \text{ \AA}$. 也可在分子蒸汽, 特别是 NO 中得

到中心波长为 1510, 1430, 1360 及 1300 Å 的宽调谐辐射的四波混频^[24]。

扼要评述四波和频混频过程及其在产生真空紫外区可调谐相干辐射方面的应用, 是本文的目的。下边将简要介绍所用装置, 随后举出国际商用机器公司、斯坦福大学及多伦多大学工作的几个实例。

II. 理论概要

大家知道, 在存在单色光或准单色光波场, 即 $\bar{E}(r, t) = \sum_i \bar{E}(\omega_i)$ 时介质的极化可写为:

$$\begin{aligned} \bar{P}(\omega_i) = & \chi^{(1)}(\omega_i) : \bar{E}(\omega_i) \\ & + \sum_{jk} \chi^{(2)}(\omega_i = \omega_j + \omega_k) : \bar{E}(\omega_j) \cdot \bar{E}(\omega_k) \\ & + \sum_{ikl} \chi^{(3)}(\omega_i = \omega_j + \omega_k + \omega_l) : \bar{E}(\omega_j) \\ & \times \bar{E}(\omega_k) \bar{E}(\omega_l) + \dots \end{aligned} \quad (1)$$

式中 $\chi^{(n)}$ 为 n 阶极化张量。对于三次谐波产生及四波和频混频只需涉及 $\chi^{(3)}$, 其主要项可写成:

$$\chi^{(3)}(\omega_0 = \omega_1 + \omega_2 + \omega_3) \propto \frac{\langle g|r|a \rangle \langle a|r|b \rangle \langle b|r|c \rangle \langle c|r|g \rangle}{(Q_{cg} - \omega_1 - \omega_2 - \omega_3)(Q_{bg} - \omega_1 - \omega_2)(Q_{ag} - \omega_1)} \quad (2)$$

式中, $\langle g|r|a \rangle$ 为基态 g 与寿命为 Γ_a 的激发态 a 之间的电偶极子矩阵元, 而 $Q_{ag} = \omega_{ag} - i\Gamma_a/2$ 是激发态 a 与基态 g 之间的能量差 (参见图 1)。

方程(2)表明, 只要外加频率 $\omega_1, \omega_2, \omega_3$ 的数值使共振分母的实数部分趋于零, 即当 $(Q_{ag} - \omega_1) = 0$, 或 $(Q_{bg} - \omega_1 - \omega_2) = 0$ 或 $(Q_{cg} - \omega_1 - \omega_2 - \omega_3) = 0$ (分别相应于单光

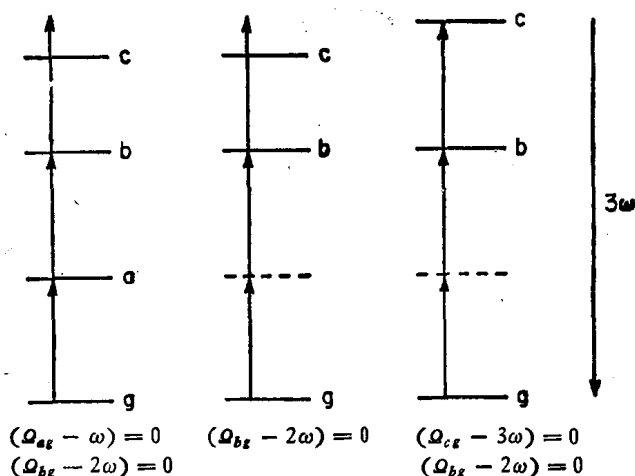


图1 导致三次谐波的一些共振过程的能级示意图

子、双光子、三光子共振)就发生共振增强。如 ω_1 、 ω_2 或 ω_3 三者中的任一个等于共振频率(Q_{ag} 等等), $\chi^{(3)}$ 将会共振增大,而入射光会被强烈吸收。再者如 $\omega_0 = \omega_1 + \omega_2 + \omega_3$ 等于共振频率,则产生的辐射将被吸收。但如果 $\omega_1 + \omega_2$ 等于双光子跃迁(Q_{bg}),则 $\omega_1 + \omega_2$ 的入射光会因弱双光子跃迁而受到相当弱的吸收,而 $\chi^{(3)}$ 的共振增大能与单光子共振一样强。

对于三次谐波的产生, $\chi^{(3)}$ 可简化为:

$$\chi^{(3)}(\omega_0 = 3\omega) \propto \frac{\langle g | r | a \rangle \text{etc}}{(Q_{cg} - 3\omega)(Q_{bg} - 2\omega)(Q_{ag} - \omega)} \quad (3)$$

当 ω 、 2ω 或 3ω 接近共振时 $\chi^{(3)}$ 有很大增加,如图2所表示的锂。将 2ω 调谐至共振,蒸汽中的非线性极化 $\chi^{(3)}|E|^3$ 可达到接近固体的非线性极化。

为了有效地产生三次谐波,共线相位匹配是必要的,即折射率 $n(3\omega) = n(\omega)$ 或 $\chi^{(1)}(3\omega) = \chi^{(1)}(\omega)$, 以便得到更长的有效相互作用长度。在蒸汽中选择合适的缓冲气体并改变

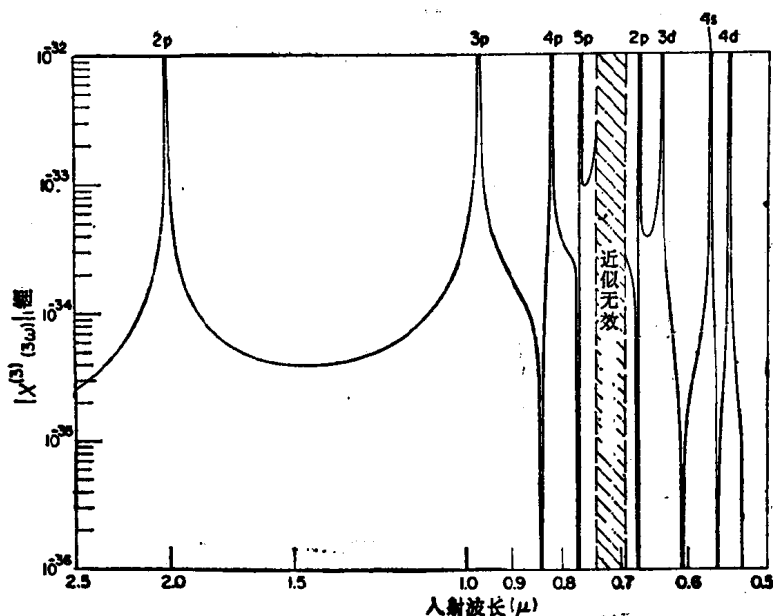


图2 锂的 $\chi^{(3)}(3\omega)$ 随波长的变化

其密度来满足相位匹配关系: $\chi_{\text{蒸汽}}^{(1)}(\omega) + \chi_{\text{缓冲气体}}^{(1)}(\omega) = \chi_{\text{蒸汽}}^{(1)}(3\omega) + \chi_{\text{缓冲气体}}^{(1)}(3\omega)$. Rb 蒸汽及 Xe 缓冲气体混合物的例子示于图 3. 已证明该混合物在将 $1.06\mu\text{m}$ 辐射变换成为 $3547\text{\AA}$ 辐射的效率为 10%—20%^[25].

对于产生可调谐真空紫外辐射来说, $\omega_0 = 2\omega_1 + \omega_2$ 的过程是重要的: $\chi^{(3)}$ 变为

$$\chi^{(3)} \propto \frac{\langle g|r|a \rangle \text{ etc}}{(\Omega_{cg} - 2\omega_1 - \omega_2)(\Omega_{bg} - 2\omega_1)(\Omega_{ag} - \omega_1)} \quad (4)$$

在该情况下, 将 $2\omega_1$ 调谐至宇称允许的双光子共振频率 Ω_{bg} , 便可获得大的增强. 此外, 利用圆偏振 ω_1 及 ω_2 辐射可消除三次谐波, 因为在该情况下在各向同性介质中对于三倍频来说, 角动量是不守恒的.

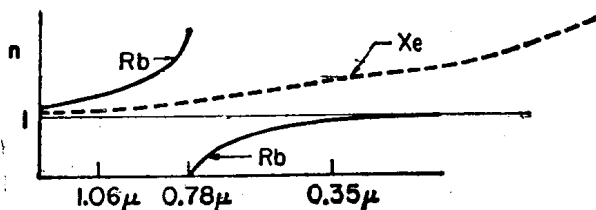


图3 Rb:Xe 混合物的折射率随共振线附近波长的变化^[17]

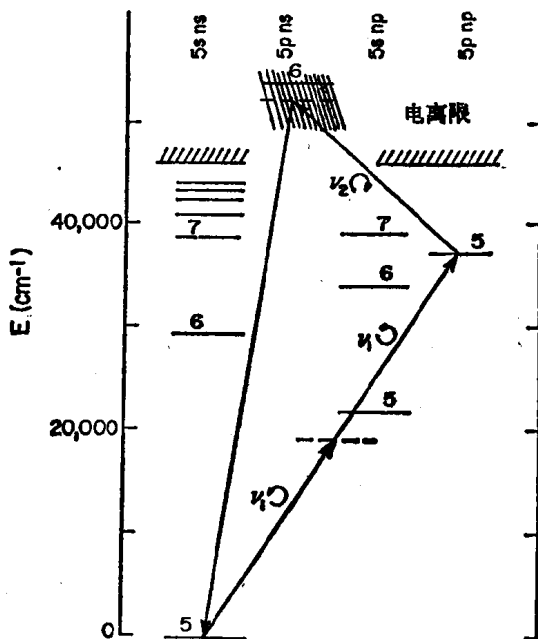


图4 Sr 的 $2\nu_1$ 和 $2\nu_1 + \nu_2$ 共振于宽自电离能级的能级图

选择 ω_1 及 ω_2 使 $2\omega_1 + \omega_2$ 相应于超过电离限的能量,特别是相应于宽的自电离能级,可获得一定的调谐能力,正如 Hodgson 等人在 Sr 中所证实的 (图4)^[22]。Sorokin 等人^[26]讨论了自电离态及与它相互作用的连续态对四波极化率的影响,即

$$\chi^{(3)} \propto \frac{\langle g|r|a\rangle\langle a|r|b\rangle}{(\Omega_{bg} - 2\omega_1)(\Omega_{ag} - \omega_1)} \times \int \frac{\langle g|r|\phi_\nu\rangle\langle\phi_\nu|r|b\rangle d\nu}{(\Omega_{\nu g} - 2\omega_1 - \omega_2)} \quad (5)$$

式中 $\langle g|r|\phi_\nu\rangle$ 为由基态至未微扰连续态 ϕ_ν 的偶极矩阵算符的矩阵元。

这里共振增强也起了作用, 因为自电离态 ($\Omega_{\nu g} = 2\omega_1 + \omega_2$) 的积分贡献大, 因此保持 $2\omega_1$ 共振于频率 Ω_{bg} , 改变 ω_2 使 $2\omega_1 + \omega_2$ 对自电离态或连续态进行扫描, 就可产生适当强的可调谐真空紫外辐射。

III. 实验情况

Harris 及其同事在谐波产生、相位匹配及共振增强方面作的最早工作导致 1972 年首次宣告可在紫外区有效地产生谐波^[16]. 混频实验用的最初激光源示于图 5. 用一个锁模 Nd:YAG 激光器和放大器产生 $1.06\mu\text{m}$ 脉冲串辐射, 其中每个脉冲的宽度为 50psec, 总能量 $\sim 10\text{mJ}$, 峰值功率 20MW. 该辐射用 KDP 晶体倍频至 $5320\text{\AA}$ (效率达 80%). 可直接利用 $5320\text{\AA}$ 辐射, 或者在第二个 KDP 晶体中再次倍频或与 $1.06\mu\text{m}$ 辐射混频, 分别产生 $2660\text{\AA}$ 或 $3547\text{\AA}$ 的辐射 (效率达 10%). 用这种方法在金属蒸汽及惰性气体中作进一步混频, 很易得到很多固定频率的高功率辐射. 例如在 Cd:Ar 混合气体中对 $3547\text{\AA}$ 辐射进行三倍频得到 $1182\text{\AA}$ 辐射 (Kung 等人^[16]), 在 Xe:Ar 混合气体中进行三倍频, 得到 $887\text{\AA}$ 辐射 (Harris 等人^[17,27]).

利用 $2660\text{\AA}$ 辐射泵浦参量振荡器^[18]可使该激光源增强调谐能力 (参量放大器由 ADP 晶体组成). 对得到的宽荧

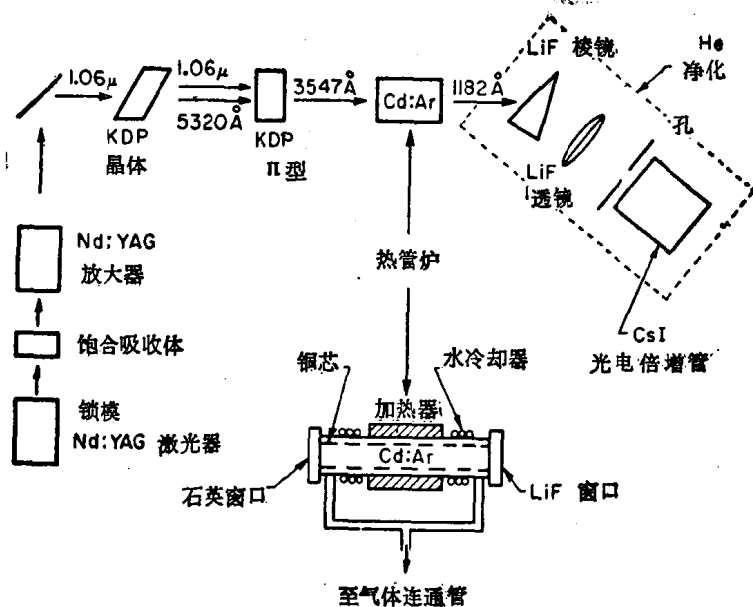


图5 由大功率激光器产生相干真空紫外辐射的方法^[16]

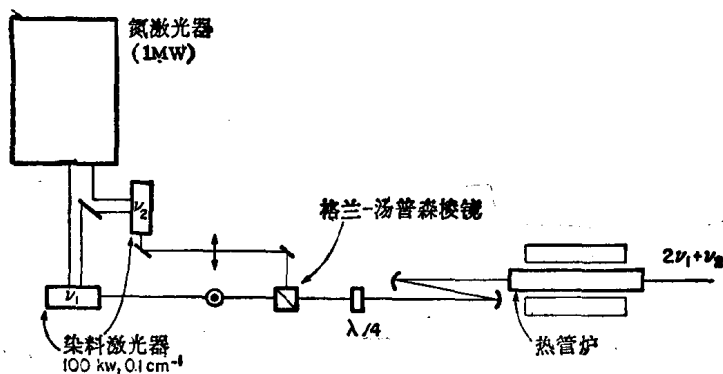


图6 两个染料激光器光束组合,产生可调谐相干真空紫外辐射的方法^[22,23]

光带进行了空间及频率滤波,并由第二个 ADP 晶体进行放大。晶体温度由 50° 变化至 105°C,可得到 4200—7200 Å 的

调谐范围, 输出能量 $> 100\mu\text{J}$, 带宽 $5-20\text{ \AA}$. Kung 利用这种可调谐激光源^[28], 在 Xe 中产生了可调谐微微秒真空紫外辐射, 这点将在下面讨论.

Hodgson, Sorokin 及 Wynne 用氮激光器泵浦的染料激光器作初始光源, 得到了可调谐真空紫外辐射 (图 6). 在该方法中将窄带辐射调谐到非线性介质原子能级的多普勒分布内, 这样利用特定的共振增强, 可使增大 $\chi^{(3)}$ 所需的激光功率相当小. 我们仿效 Hodgson 等人的大体设计^[22], 在多伦多大学建立了一台类似装置. 采用一台发射峰值功率为 1MW , 脉宽为 $\sim 10\text{nsec}$ 的脉冲氮激光器, 同时泵浦 Hänsch 设计的两支染料激光器^[28]. 该装置可产生 50kW 的输出, 典型线宽为 $\sim 0.1\text{cm}^{-1}$, 可由 $\sim 4000\text{ \AA}$ 调谐至 $7000\text{ \AA}$, 调谐范围取决于所用的染料或染料混合物. 两激光束的偏振互相垂直, 随后在格兰-汤普森棱镜中重叠, 再用四分之一波片实现两个方向相反的圆偏振光. 而后, 频率为 ν_1 及 ν_2 的这两个共线光束聚焦于包含原子金属蒸汽的热管炉中. 典型的作法是一个染料激光器的频率固定在适当的双光子跃迁频率的一半处, 另一染料激光器的频率是可变的, 因而产生了可调谐和频 $2\nu_1 + \nu_2$ 辐射. 这样, Hodgson 等人用 Sr 蒸汽首次获得了可调谐真空紫外辐射. 下面将论述这一成果以及 Wallace 和 Zdasiuk 用 Mg^[29] 而 Innes 等人用 NO^[30] 在多伦多大学取得的新成果.

IV. 结果及讨论

氙. Kung 利用了由高功率参量振荡源产生的泵浦、信号及空闲波辐射, 可在 Xe 中产生在 $1180-1946\text{ \AA}$ 范围内调谐的脉冲真空紫外辐射^[18]. 入射辐射在 Xe 中聚焦良好, 由泵浦、信号及空闲波辐射的和频、差频及谐波提供了很多三阶非

表 1 真空紫外激光辐射简表

类 别	波长(Å)	气体	激光功率(kW)	能量(mJ)	线宽(cm^{-1})
分子解离	1726	Xe	2×10^3	0.5	600
	1695—1745	Xe	20	0.005	150
	1724	Xe	10^2	1	600
	1724	Xe	6×10^4	100	600
	1457	Kr	≤ 10	—	600
	1261	Ar	—	~ 200	—
	1933	ArF	2×10^3	10^5	200
氢分子	1098—1240	p-H ₂	3.2(90K 时)	~ 0.01	< 1
	1150—1240	D ₂	4.8(90K 时)	~ 0.01	< 1
	1240—1613	H ₂	3×10^2	~ 1	< 1
一氧化碳	1811—1970	CO	15	~ 0.03	< 1
碳离子	1548, 1551	CIV	~ 1	$\sim 10^{-3}$	< 1

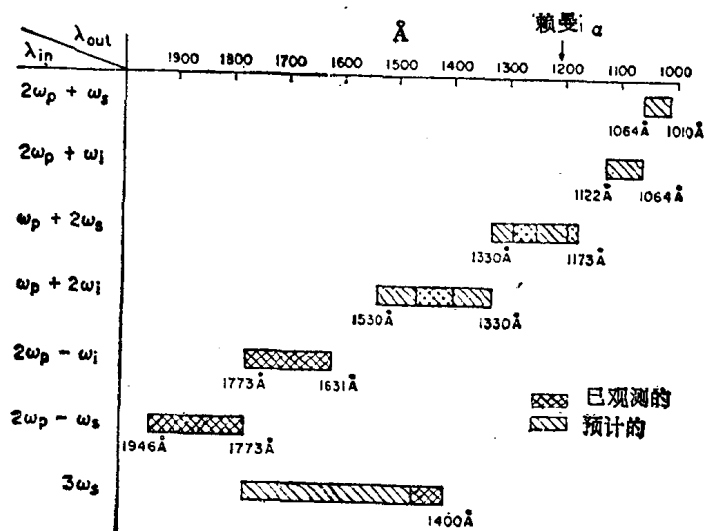


图 7 用参量振荡器产生的非线性和频、差频及三次谐波得到的可调谐范围(ω_s 、 ω_p 、 ω_i 分别为信号频率、泵浦频率及空闲频率)