

红 外 辐 射 的 产 生

利用非线性光学原理

沈元壤 主编

孔凡平 刘心田 吴祥鹤 译

内 容 简 介

本书共分六章,系统地论述利用非线性光学原理产生中、远红外辐射的各种光学过程,包括晶体中的光学混频和参量振荡、基于自旋非线性极化率的差频混频、原子蒸气中的受激喇曼和四波混频过程、气体介质中的光泵过程等。

本书可供光学(特别是激光、红外)、固体物理以及半导体专业的研究人员和高等院校师生参考。

Y.-R. Shen (ed.)

NONLINEAR INFRARED GENERATION

Springer-Verlag, 1977

红 外 辐 射 的 产 生

利用非线性光学原理

沈元壤 主编

孔凡平 刘心田 吴祥鹤 译

汤定元 校

责任编辑: 赵惠芝

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

*

1982 年 12 月第 一 版 开本: 787×1092 1/32

1982 年 12 月第一次印刷 印张: 11 5/8

印数: 精 1—2,720 插页: 精 3 平 2

平 1—2,650 字数: 261,000

统一书号: 13031·2044

本社书号: 2791·13—3

定 价: 布脊精装 2.40 元
平 装 1.85 元

前 言

利用非线性光学原理产生高强度相干红外辐射,是当前红外科学研究中的重要课题之一。它的重要意义在于:1.使非线性光学研究成果得到直接应用;2.是研究原子、分子和凝聚态物质中能量弛豫过程的一种有力手段。此外,高强度红外相干辐射源在远红外领域开拓以及光化学应用方面的潜力,正在不断显现出来。

本书是由美国加利福尼亚大学物理系沈元壤教授主编的,它概述了有关利用非线性原理产生红外辐射的专业研究方面的发展概况。本书特点是着重阐明基本物理概念及其沿革,避免了不必要的冗长的数学推导,从而不仅为有关的专业研究工作者提供了有价值的物理思想和数据资料,同时也可作为良好的入门指导书。尤其值得指出的是,在本书翻译出版过程中,沈元壤教授又为中译本撰写了序言,概要地介绍了原书出版以后这一领域的新进展。对于沈元壤教授的热情和负责精神,我们表示衷心感谢。

本书第一、五两章由孔凡平翻译,第二、三两章由刘心田翻译,第四、六两章由吴祥鹤翻译。译文不当之处,欢迎读者批评指正。

汤定元

1980. 11. 20

主编为中译本写的序

《红外辐射的产生——利用非线性光学原理》中译本与读者见面了,这是一件很有意义的事情。作为这本书的编者,我首先代表作者们向译者、校者致谢,并利用应邀撰写中译本序的机会,对编辑本书的动机、感想以及这一门学科近来的发展和将来的展望作简单的介绍。

在某次量子电子学会议上,应用物理丛书的主编 K. V. Lotsch 要我编一册与非线性光学有关的书,因为书的页数有限制,所以题目不能太广。当时受重视的科研项目之一便是如何利用激光来产生在不同频率范围内可调谐的强光束,而红外光的产生,由于其重要的应用价值,更受到重视。因此,我选择后者为题。应用物理丛书的宗旨是介绍发展中的科研课题,所以本书描述的只是非线性产生红外光的各种方法,而并没有仔细考虑到如何实用普及;至于哪一种方法较为实用,还得视将来的发展而定。

本书原包括七章,除已有各章外,尚有一章是贝尔实验室物理部主任 C. K. N. Patel 答应撰写的,主要介绍受激反磁自旋喇曼效应。遗憾的是,他因公事繁忙,不能如期缴卷,只好将这一章割爱,而由我把该章的主要理论及实验结果纳入第一章内,致使本书内容逊色不少。这也是不得已的事。

自从 1976 年本书编就以来,产生红外光的科研工作又有了很大进展,在此,就我个人认为最重要的几项工作简述如下:

1. 自由电子激光器 利用高能电子在周期性磁场中所

得到的受激康普顿散射产生可调频激光。实验已得到的最短激光波长是3微米左右,将来可能缩短至紫外波长,功率也可能大幅度提高。这类激光器的可调频范围较宽、功率较大、很有应用价值,所以虽然实验设备费用很高,各国大实验室仍在积极筹备这一方面的科研工作 [D. A. G. Deacon *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **38**, 897 (1977); L. R. Elias *et al.*, Stanford High Energy Phys. Lab. Report, No. HEPL-812 (1976, unpublished)].

2. 16微米光泵激光器 利用激光光束分解 UF_6 分子,以取得铀的同位素分离,这是目前一项重要的科研项目,所需要的强激光波长是16微米。实验已经证明,得到这一类激光的最有效办法是用 CO_2 激光器来光泵 CF_4 , 功率转换可达10% [J. J. Tin, C. Wittig, *Appl. Phys. Lett.*, **30**, 420 (1977); A. Stein *et al.*, *Opt. Lett.*, **3**, 97 (1978)].

3. 皮秒(10^{-12} 秒)可调红外脉冲光波 用高功率锁模激光泵浦参数振荡及放大器,可得到可调频皮秒红外脉冲波,这种光源在皮秒瞬态光谱应用上是极为需要的 [例如, Z. I. Ivanova *et al.*, *Sov. J. Quant. Electron.*, **7**, 1414 (1977); A. Seilmeier *et al.*, *Opt. Commun.*, **24**, 237 (1978); Y. Tanskh *et al.*, *Opt. Commun.*, **24**, 273 (1978)].

4. 色心红外可调激光器 卤化物晶体中的色心缺陷,它的红外辐射能带很宽,辐射效率极高是理想的激光材料。如以氙离子、氪离子、Nd:YAG 等激光器为泵源,可得0.8—3.3微米的红外可调连续激光,功率在数十微瓦以上 [L. E. Mollenauer, *Methods of Experimental Physics*, edited by C. L. Tang (Academic Press, N. Y., 1979)]. 如以锁模激光器作为色心激光器的泵源,则可以获得可调红外皮秒脉冲波 [L. F. Mollenauer and D. M. Bloom, *Opt. Lett.*, **4**, 247

除上述各项以外，红外光产生的科研工作尚有不少其它进展，在此不能一一叙明。

用非线性光学方法产生红外光的主要困难是，用作泵源的一般激光不够稳定。因此，红外输出的强度也很不稳定，而由下转换方式来产生红外光，转换效率又很低。如用强激光为泵源，还需考虑到物质被击穿及出现其它不利的非线性光学现象等问题。这些问题，阻碍了非线性产生红外技术的迅速推广。现在，某些困难已逐步得到解决，例如，高强度Nd:YAG激光器的稳定程度已优于1%，转换效率也可以利用反馈或波导等方法来提高。由此看来，将来非线性光学普遍应用到红外光的产生、探测等方面的可能性还是很大的。

沈元壤

1979年6月

序 言

在红外科学发展中, 红外辐射源的研究是头等重要的课题。本书所论述的是这一领域在新的研究方向上的进展, 即通过非线性光学方法产生相干的红外辐射。过去, 黑体辐射是唯一的传统红外源, 它的非相干性, 相当弱的光谱强度以及有限的光谱纯度, 都有待进一步提高。后来, 红外激光器发明了, 除了频率固定和难以调谐外, 激光光束已具有所需要的全部性质。然而, 随着高功率激光器的问世, 人们已能利用各种非线性光学效应来产生新频率的相干强红外光束。而且, 在许多场合输出是连续可调谐的。很显然, 这项研究工作是红外科学进程中的里程碑。

近年来, 我们亲眼看到了红外源研制方面迅速增长的活力。例如, 在最近第九届国际量子电子学会议(1976)上补充提出的六篇报告中, 曾详细地讨论了这方面的内容。因此, 我们认为, 出版一本专门讨论非线性光学方法产生相干红外辐射的书籍, 应当说是适时的。本书分成以下六章。

第一章是引论, 给出了简要的历史评述以及和本书主题有关的非线性光学的一些基本知识。这一章也相当详尽地描述了受激喇曼和电磁声子散射的红外产生过程。章末的表格总结了这一领域的现状。

第二章叙述晶体中两束 CO_2 激光差频混频产生分立可调谐远红外辐射的过程。它包括差频混频的理论基础, 对各种相位匹配技术的讨论, 材料和差频混频几何形式的选择以及实验现状的描述。这一章还用一节讨论了所产生的远红外

辐射的可能应用,以作为结尾。

第三章评述利用参量振荡和光学混频产生红外的过程。首先介绍介质中非线性波相互作用理论导引,继而讨论由不同激光源光学混频、受激喇曼散射、四波喇曼混频和参量振荡产生连续可调谐红外辐射的过程。这一章对直到 25 微米的全部红外谱区的可调谐相干源能否制造成功提出了综合看法。本章选入的几个表格总结了实验现状。

第四章论述了由自旋反转跃迁的差频混频产生可连续调谐远红外辐射的问题,详尽地阐述了其基础理论和实验结果。

第五章讨论了金属蒸气中由受激喇曼散射和四波混频产生可调谐红外辐射问题,说明了金属蒸气如何通过共振增强作用而成为有效的光学混频器。还详尽地说明了许多有意义的实验发现。关于金属蒸气中四波混频产生的可调谐紫外辐射,也列在这一章中。

第六章内容是在气体中应用光泵技术产生红外辐射。已经证明,光泵技术对产生粒子数反转和激光发射是最有效的。这一章还对气体中分别通过电子跃迁、振动转动跃迁、纯转动或反转跃迁的光泵激光发射作了最新的评述。

对于各位作者的热情支持,编者表示深切感谢。没有他们的密切配合,本书是不可能出版的。

沈元壤

1976 年 10 月于加州贝克利

目 录

前言	(v)
主编为中译本写的序	(vi)
序言	(x)
第一章 引言	沈元壤(Y.-R. Shen) (1)
1.1 历史回顾	2
1.2 光学混频的红外产生	4
1.3 红外参量振荡器	8
1.4 通过受激喇曼散射和电磁声子散射产生红外 辐射	9
1.5 非线性红外产生的其它方法	16
1.6 总结	19
参考文献	19
第二章 远红外谱区 CO_2 激光的光学混频	
.....R. L. Aggarwal B. Lax(25)	
2.1 历史背景	25
2.2 非线性差频混频	29
2.2.1 理论背景	29
2.2.2 相位匹配技术	38
2.3 非线性晶体的选择	48
2.4 非共线混频的几何形式	62
2.4.1 简单的非共线几何形式	62
2.4.2 折叠的非共线几何形式	66
2.5 用 CO_2 激光器的实验系统	70

2.5.1 GaAs 中非共线相位匹配远红外产生	76
2.5.2 在 GaAs 中的共线相位匹配产生	85
2.5.3 在其它系统中的远红外产生	87
2.6 应用	93
2.6.1 分子和固态的远红外研究	94
2.6.2 等离子体的远红外研究	96
2.7 展望	99
参考文献	99
第三章 参量振荡和混频作用	
..... R. L. Byer R. L. Herbst(105)	
3.1 概述	105
3.2 非线性的相互作用过程	112
3.2.1 二次谐波产生	112
3.2.2 三种频率的相互作用	121
3.3 通过混频作用的红外产生	127
3.3.1 染料激光器源	127
3.3.2 参量振荡器源	136
3.3.3 红外激光器源	139
3.4 通过喇曼混频作用的红外产生	142
3.4.1 受激喇曼散射	142
3.4.2 相干喇曼散射的混频作用	147
3.5 红外参量振荡器	152
3.5.1 一般介绍	152
3.5.2 阈值和上升时间	156
3.5.3 转换效率	159
3.5.4 调谐范围和带宽	164
3.6 结论	173
参考文献	175
第四章 基于自旋非线性的远红外差频混频作用	
..... V. T. Nguyen T. J. Bridges(183)	

4.1 基于自旋反转跃迁的差频混频作用	184
4.1.1 理论基础	184
4.1.2 相位匹配问题	189
4.1.3 共线互作用	189
4.1.4 非共线互作用	192
4.1.5 实验细节	192
4.2 应用自旋反转喇曼激光器产生可调谐的远红 外辐射	195
4.2.1 10.6 微米泵浦的自旋反转喇曼激光器的线宽和 可调谐性	196
4.2.2 产生可调谐远红外辐射的实验	199
4.2.3 远红外辐射的线宽和可调谐性	205
4.3 结束语	206
参考文献	207
第五章 原子蒸气中的光学混频	
..... J. J. Wynne P. P. Sorokin(209)	
5.1 实验技术	210
5.2 蒸气中的光学非线性理论	215
5.3 红外产生	219
5.3.1 基于受激电子喇曼散射过程的红外产生	220
5.3.2 单激光束和双束斯托克斯光之间的光学混频	238
5.3.3 斯托克斯光参与的四波光学混频红外产生	242
5.3.4 其它四波混频的红外产生过程	254
5.4 紫外产生	256
5.4.1 多光子电离	257
5.4.2 基于三次谐波产生原理的紫外产生	260
5.4.3 基于四波参量和频的紫外产生	262
5.5 结束语	277
参考文献	279

第六章 气体中的光学泵浦过程	
..... 张道源 (T. Y. Chang) (282)	
6.1 历史背景	282
6.2 基于电子跃迁的激光器	290
6.2.1 Cs, Sr 和 K 原子蒸气激光器	290
6.2.2 I ₂ , Na ₂ 和 NO 分子激光器	294
6.3 基于振动-转动跃迁的激光器	297
6.3.1 基于 CO ₂ , N ₂ O, OCS, CS ₂ , HCN 和 C ₂ H ₂ 中差带的激光器	298
6.3.2 基于 OCS, SF ₆ , CO ₂ , CO 和 H ₂ O 中热带的激光器	307
6.3.3 基于 HF 和 NH ₃ 中基带的激光器	310
6.4 基于纯转动跃迁或反转跃迁的激光器	311
6.4.1 基本原理	311
6.4.2 已观测到的激光谱线的综合	318
6.4.3 特例和特殊论题	321
6.4.4 实验技术	330
6.4.5 激光性能的理论分析	335
6.4.6 应用	345
6.5 结论	347
参考文献	349
附加参考文献	358

第一章 引 言

沈元壤 (Y.-R. Shen)*

本书旨在研究使用非线性光学方法产生红外相干辐射的过程,重点是在中、远红外谱区产生可调谐红外辐射。从科学观点来看,对新型红外辐射源的需要是十分显然的。虽然红外光谱学是一个重要的科学领域,但是它的发展却总是落后于可见谱区的光谱学研究。落后的原因是两方面的:1. 红外探测器不够灵敏;2. 红外辐射源强度不够高。黑体辐射传统地被看成是唯一可供实用的红外辐射源,但黑体辐射受普朗克分布定律支配,它在中、远红外谱区的辐射功率相当微弱。例如,每平方厘米 5000 K 黑体向 4π 立体角辐射的总功率约为 3500 瓦,而在 50 ± 1 厘米⁻¹ 波数范围内的远红外成分却只有 3×10^{-6} 瓦/厘米²·球面度。因此,辐射源的强度微弱,加上探测器灵敏度较低,就一直成为红外科学发展的主要障碍。近年来,红外激光器已可供实用,其强度显然超过普通光谱仪器的要求,但是,红外激光器的输出频率不连续,基本上又不能调谐,所以远不能令人满意。然而,借助激光器,使用非线性过程,则有可能产生能在很宽谱区范围内可调谐的红外相干辐射。这些非线性过程包括差频混频、参量振荡、受激喇曼和电磁声子散射、光泵激光发射等。现在已经得到以连续波模式或脉冲模式输出的红外相干辐射,其强度远远超过了

* Shen, Yuen-Ron, Physics Department, University of California, Berkeley, CA 94720, USA.

任何实用的黑体辐射源水平。目前, 峰值强度很高的脉冲输出已开创了红外光谱学的新领域, 这就是瞬态相干光谱学及非线性光谱学。人们可以期望, 当这些辐射源广泛实用时, 红外科学将一定会发生革命性的变化。

1.1 历史回顾

实际上, 用非线性方法产生红外辐射的过程并不局限于使用激光作为泵浦源。多年来, 诸如速调管、磁控管、返波管等电子束管都已用作亚毫米波和远红外辐射源, 其波数已达到了 25 厘米^{-1} 。利用非线性的倍频作用, 还能获得更高的频率。遗憾的是, 随着频率的增加, 这些器件的辐射强度急剧下降。今天, 各种高强度激光的问世, 已使非线性混频过程在很宽的电磁辐射谱区里很容易实现。1961年, Franken 等人^[1.1]首次报道了在石英晶体中探测到二次谐波产生现象。此后不久, Bass 等人^[1.2]用两束不同的激光进行了和频混频的首次实验。Smith 和 Braslan^[1.3]首先观测到差频产生。尔后, Bass 等人^[1.4]验证了光学整流效应。在首次的二次谐波产生实验成功后, Giordmaine^[1.5]和 Maker 等人^[1.6]立即认识到相位(或动量)匹配对提高转换效率的重要性。对诸如聚焦^[1.7, 1.8]和双折射^[1.9]等实现有效非线性混频的其它重要因素, 也都进行了研究。在较早的年代里, 还发现了许多其它的非线性光学效应。其中, 参量振荡是 Giordmaine 和 Miller^[1.10]首先证实的, 而受激喇曼散射则是 Woodbury 和 Ng^[1.11]发现的。

在非线性红外产生方面, Zernike 和 Berman^[1.12]首次报道, 在石英晶体中探测到由多种模式钎玻璃激光脉冲混频而输出的远红外辐射。其后, Zernike^[1.13]在 InSb 材料中也观测到了两种 CO_2 激光频率混频产生的远红外辐射。接着,

Yajima 和 Inoue^[1.14] 以及 Faries 等人^[1.15] 同时用两束不同频率的 Q 开关红宝石激光器作为光学混频的泵浦源, 产生了远红外辐射. Berkeley 研究组^[1.15] 的工作侧重在连续调谐方面, 并且研究了输出的光谱成分. 贝尔实验室的研究组^[1.16-1.20] 使用 CO₂ 激光在半导体中进行了许多差频混频实验, 他们研究了在远红外辐射产生过程中的各种相位匹配方式. 同时, 为了覆盖从可见一直到近红外的频率范围, 还对参量振荡器进行了研究^[1.21]. Sorokin 等人^[1.22] 以及 Rokni 和 Yastiv^[1.23] 在金属蒸气中观测到了受激电子喇曼散射. Patel 和 Shaw^[1.24] 发明了中红外谱区可调谐的受激自旋反转喇曼激光器. Chang 和 Bridges^[1.25] 则研制成功光泵远红外分子激光器. Yarborough 等人^[1.26] 从受激电磁声子散射过程中产生了可调谐远红外输出. Dewey 和 Hooker^[1.27] 采用染料激光器, 在 LiNbO₃ 中用差频混频产生了可调谐的红外辐射.

最近, Nguyen 和 Bridges^[1.28] 证实, 利用可调谐自旋反转跃迁现象, 有可能使光学混频过程的远红外输出受到共振增强. Matsumoto 和 Yajima^[1.29] 以及 Yang 等人^[1.30] 随后用两束染料激光在非线性晶体中混频, 产生了谱区范围很宽的可调谐远红外辐射. Sorokin 等人^[1.31] 证明, 可调谐红外辐射也能在蒸气中通过三次四波混频过程来产生. Lax, Aggarwal 及其同事^[1.32, 1.33] 广泛地研究了两束 CO₂ 激光在半导体中差频混频所产生的远红外现象. 他们强调了分立谱线输出的精细可调谐性的重要性. 他们与 Yang 等人^[1.30] 都论证了用非共线相位匹配光学混频方法来提高远红外产生的效率. 使用多次全反射方法^[1.34], Aggarwal 等人^[1.33] 进一步提高了转换效率, 并首次观察到了由差频混频输出的可探测的连续波远红外辐射. 最近, Bridges 等人^[1.35] 在 Te 材料

中把自旋反转喇曼激光束与 CO_2 激光束混频, 也获得了可调谐的连续波远红外输出。此后, Thompson 和 Coleman^[1.36] 用 GaAs 远红外波导作为非线性介质, 成功地产生了远红外辐射。除了光学混频方法以外, 在以可调谐染料激光器作为泵浦源的原子蒸气^[1.37] 和分子气体^[1.38] 的受激喇曼散射过程中, 也产生了可调谐的红外辐射。同时, 还出现了能在有限的谱区范围内进行调谐的光泵高压分子气体激光^[1.39]。Byer 及其同事^[1.40] 应用参量振荡器进行光学混频, 他们正在研制一种系统, 可以连续可调谐地输出从近紫外直到 20 微米左右的红外辐射。

此外, 非线性红外产生还有一些其它方法。Auston 等人^[1.41] 研究了由于缺陷或杂质吸收的光激发而引起的光学混频来产生远红外辐射。Yang 等人^[1.42] 以及 Yajima 和 Takeuchi^[1.43] 通过皮秒 (10^{-12} 秒) 光学脉冲的光学整流过程, 产生远红外短脉冲。Byer 和 Herbst^[1.44] 用分子气体中四波喇曼混频方法产生了可调谐红外辐射。Granastein 等人^[1.45] 则观测了相对论性电子束在空间变化的磁场中运动所产生的可调谐亚毫米波辐射。

非线性红外产生是一个比较新的研究领域。虽然涉及参量振荡(参见第三章), 受激自旋反转喇曼激光器^[1.46, 1.47] 及光泵气体激光器(参见第六章)等专题有许多评论性文章, 但唯一关于远红外产生的文章是由 Shen 提出的^[1.48]。

1.2 光学混频的红外产生

光学混频是最常用的实现非线性红外产生的方法。其基本理论是众所周知的^[1.49]。光学混频产生的电场 $\mathbf{E}(\omega)$ 由下式决定:

$$\nabla \cdot [\bar{\epsilon}(\omega) \cdot \mathbf{E}(\omega) + 4\pi \mathbf{P}^{\text{NL}}(\omega)] = 0, \quad (1.1)$$

$$[\nabla_z (\nabla_z) - \omega^2 \epsilon(\omega) / c^2] \mathbf{E}(\omega) = (4\pi \omega^2 / c^2) \mathbf{P}^{\text{NL}}(\omega),$$

其中 $\bar{\epsilon}$ 是介质的线性介电常数; $\mathbf{P}^{\text{NL}}(\omega)$ 是泵浦场拍频作用下感生的非线性极化强度。若以晶体中差频混频为例, 在二级电偶极子近似条件下, 我们得到

$$\mathbf{P}^{\text{NL}}(\omega) = \chi^{(2)}(\omega = \omega_1 - \omega_2) : \mathbf{E}(\omega_1) \mathbf{E}^*(\omega_2), \quad (1.2)$$

这里 $\chi^{(2)}$ 是二阶非线性极化率; $\mathbf{E}(\omega_1)$ 和 $\mathbf{E}(\omega_2)$ 是泵浦场。

在非衍射限制条件下, 式(1.1)和(1.2)的解相当简单, 这将在第二章和第三章中详细讨论。对于无限平面波在半无限介质中沿 $\hat{z}$ 方向上的差频产生, 我们将得到熟知的结论:

$$|\mathbf{E}(\omega, z=l)|^2 = \left| \frac{2\pi\omega^2}{c^2 k_z} \mathbf{P}^{\text{NL}}(\omega) \right|^2 \left[\frac{\sin(\Delta k \cdot l/2)^2}{(\Delta k \cdot l/2)} \right] l^2, \quad (1.3)$$

其中 $\Delta k = (\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}) \cdot \hat{z}$ 是 $\hat{z}$ 方向上的相位失配。可见, 差频产生的效率在 $\Delta k = 0$ 时达到极大。实际上, 还应考虑光束的有限截面、聚焦、吸收、双折射等因素的影响。这些影响, 在第二章和第三章里, 将引用文献中有关和频产生和二次谐波产生的公式来讨论。

但是, 如果差频的频率比较低, 则和频产生与差频产生之间有很大差别。首先, 当波长与光束的尺寸可以相比拟时, 衍射的作用就不再能忽略。其次, 对于厚度为 l 的晶片, 差频波矢在很宽的锥角范围内都近似满足相位匹配条件 $\Delta k \cdot l \ll 1$ 。再则, 凝聚态物质在红外谱区的折射率通常都比较大 (~ 5), 所以边界对远红外差频产生的影响就可能很重要。这种边界的影响表现为: 在介质中所产生的辐射, 有一部分可能受到全反射, 不会从介质中逸出。最后, 探测器的集聚角度甚至可能比辐射的发射锥角还小。当差频频率越低, 这些影响自然就越显著。

为了近似地考虑这些长波长影响, 我们选用一个简化的