

科技专题参考资料

激光

(非线性光学及金属蒸汽激光器专集)

第 八 集

科学技术文献出版社重庆分社

激 光 第 八 集
(非线性光学和金属蒸汽激光器)

中国科学技术情报研究所重庆分所 编辑
科学技术文献出版社重庆分社 出版
重庆市市中区胜利路91号

四川省新华书店重庆发行所 发行
重 庆 新 华 印 刷 厂 印刷

开本: 787×1092毫米/16 印张: 9.875 字数: 31万8千
1976年4月第一版 1976年4月第一次印刷
印数: 4950

统一书号: 15176·114 定价: 1.05元

目 录

非线性光学的产生和发展	(1)
在非线性介质中光频谐波的产生和激光混频过程	(9)
关于限制衍射和高光谱亮度的钽玻璃激光器的有效的二次谐波的产生	(28)
腔内光频二次谐波产生的理论	(34 ¹)
光在非线性介质中的自聚焦和小尺寸光丝的研究	(41)
微微秒激光脉冲	(53)
可调频的光参量振荡器	(67)
有效的内部参量振荡	(83)
扩大对光谱的调谐	(86)
金属蒸汽激光器	(89)
He-Cd 直流放电中的彭宁电离	(96)
氦镉激光器中饱和与放电的研究	(99)
He-Cd 激光器放电中的亚稳态密度和激励过程	(105)
电泳式氦镉激光放电中3250埃和4416埃 激光谱线的激励机理	(113)
He-Cd激光器中等离子体参量和激励机理	(120)
研究轴向磁场对He-Cd ⁺ 激光器的影响	(123)
连续波金属蒸汽激光器的简易高温系统	(126)
封离后的He ³ -Cd ¹¹⁴ 激光器的特性	(128)
He-Cd 金属蒸汽激光器	(131)
直流电泳式 He-Cd 激光器的稳定、长寿命连续激励	(133)
简易的分段毛细管式的低噪声氦镉激光器	(135)
氦-镉激光器某些特性的研究	(138)
He-Cd ⁺ 激光器的噪声研究	(140)
回流式氦镉激光器	(143)
脉冲碘化亚铜放电中的5106、5700和5782埃超辐射发射	(147)
5106埃脉冲铜蒸汽激光器的理论描述	(156)

非线性光学的产生和发展

四川大学物理系 曾传相

一、前言

自从六〇年出现激光之后,由于它具有传统光所不可比拟的高强度和相干性,所以很快激起人们对强光与物质相互作用性质的研究。六一年时,有人用红宝石激光在晶体中观察到倍频现象,它标志着光学中的一门新的学科分支——非线性光学的出现。这门新学科很快引起了许多科学工作者的极大兴趣,相应地开展了大量的实验与理论工作,观察到许多新现象。

顾名思义,非线性光学是研究强光通过物质时所表现出来的与光的场强成非线性关系的现象。它与传统光学中所研究的线性光学现象有着本质的不同,是光学中的一个新的重要领域。

十多年来,非线性光学得到很快发展,从初期的现象研究阶段正逐步向应用过渡。本文对这门科学的产生和发展情况,作一简略评述。

二、非线性光学产生的背景及研究它的意义

1. 非线性光学产生的背景

大家知道,非线性现象是自然界中的一种普遍现象。当物体承受某种外界作用时,它所呈现出来的响应,一般情况下是与作用强度成非线性关系,这在许多学科中是常见的事。至于谈到非线性光学的产生,我们可从如下几方面来看。

首先,从无线电电子学方面来讲,它是研究电磁波谱较长波段上,相干电磁波的产生、放大及应用的技术。在这门科学中,大量采用各种非线性元件进行频率变换和信息处理,可以说,没有非线性元件就没有无线电电子学。因为在振荡、放大、调制、解调、变频等这样一些基本过程中都包含有元件的非线性问题。例如,无线电中广泛使用非线性元件实现参量相互作用,诸如倍频、合频、差频、参量振荡和放大等。在微波波谱学及微波激光器出现之后,在研究微波与

物质的相互作用性质时,也发现了大量的非线性波谱学现象。上述的非线性现象的知识,为其后出现的非线性光学提供了许多启发性知识,促使人们去研究在光频段中的非线性现象,即是说,研究一些老现象在光频段的表現。

从光学方面来看,传统光学虽然已经有悠久的历史,然而除了克尔效应、法拉第效应等几种例外,传统光学通常涉及的是线性光学现象。即是说,物质的响应与光的场强成线性关系,表征物质性质的许多光学系数诸如折射率、吸收系数、散射截面等,为与场强无关的常量,光的迭加原理成立。因此,传统光学所研究的内容是有很大局限性的。此点,在激光技术出现之前,已经为许多人所看到。然而由于缺少很强的单色光源,使物质的非线性光学性质的研究难以进行。所以说,从光学的角度来看,研究非线性光学现象,是它的强烈内在要求。

激光技术的出现,为光学研究提供了具有高度时间相干性与空间相干性的高强度光源,从而提供了研究非线性光学现象的强有力工具,这就为非线性光学的出现创造了前提。因此,在作出第一个激光器后不久,就有人用红宝石激光器去研究非线性光学现象。自从发现晶体中的倍频效应以来,这方面的研究迅速发展,逐渐形成一个大的新领域。

综上所述,可以看出,非线性光学的出现,是光学研究的客观需要与激光技术提供的现实基础相结合的产物。

2. 研究非线性光学的意义

非线性光学的出现,之所以引起许多人的重视,原因如下:

首先,非线性光学为研究物质性质开辟了广阔途径。因为它所研究的现象,揭示了物质内部的许多新性质,大大丰富了我们的知识范围。在这门学科研究的基础上,又派生出一些学科分支,大大丰富了光学研究的内容。同时,初期看不出有什么应用价值的一些现象,随着研究的深入和时间的推移,逐渐找到了

应用,开辟了一些新的应用领域。所以,非线性光学是传统光学的重大发展。

其次,非线性光学的出现,反过来又促进了激光技术的发展。由于激光技术同无线电电子学一样,是一门研究相干电磁波的产生、放大及应用的技术,在激光器工作过程中就存在着大量的非线性现象,研究它们对弄清其工作机理与改进器件性能具有重要意义。例如,我们用一些物质的非线性吸收性质来作被动式调Q、锁模;利用一些激光工作物质的兰姆凹陷效应来稳频;用光的参量相互作用(如倍频、合频、差频、光参量振荡)及一些受激散射来变换激光频率;利用一些非线性效应于激光的测量技术,如用双光子荧光效应、倍频等测超短脉冲的宽度,用差频、合频等测一些激光的频率。

再者,值得注意的是,要把无线电电子学推进到光频段,非线性光学元件的开发是必不可少的。因为通过使用非线性光学元件可调制、解调、控制光的振幅、位相、偏振及方向,可使光束混频和调节激光频率。显然,这些都是光电子学中的基本功能。

除上述几个方面之外,非线性光学还在其他一些学科如光化学,测污染中找到应用。随着研究工作的深入,它所涉及的范围将会扩大。事实证明,一些初期看来只有理论研究价值的现象,随后也逐渐找到了应用。

三、主要的非线性光学现象及其起因

1. 非线性光学现象

十多年来已发现许多非线性光学现象,对它们可按两种方式进行分类。一种是根据现象同非线性材料能级结构的关系,分成共振型与非共振型两种,前者与物质能级结构有着密切关系;另一种是根据现象同产生非线性现象的激光性质的关系,分成相干非线性现象与非相干非线性现象两类。前者要求相互作用的光遵守能量守恒与动量守恒,波的位相关系成为重要参量。

目前所研究的主要非线性光学现象如下:

(1) 光学谐波的产生^{1,2,5,24,39}

激光出现后,首先观察到的非线性光学现象为激光的二次谐波,随后又观察到更高次的倍频现象。在许多物质内部和表面都观察到产生谐波现象。

这类现象不仅直接用来大范围跳跃式变换频率,也用倍频光作光参量振荡器的泵光,所以它对激光器

的频率转换具有重要意义。在超短脉冲中也用作测量手段。

(2) 光混频(差频、合频)现象^{8,10,15,18}

当两束不同频率的单色光通过某些非线性物质时,会产生二者的合频或差频现象,这同电子学中的变频现象相似。

差频现象用在光学中作频率的测量,在高分辨力光谱学中检查光频的变化。在光电子学中用作外差接收,也可用它由两束单色光产生微波。合频现象也是频率转换的一种方式。可把频率上转换作为红外光的探测手段。

(3) 光参量振荡器^{12,13,14,32,35}

在无线电电子学中,参量放大与振荡是一种熟知的现象。它所根据的原理是非线性物理现象所共同的,所以在激光出现之后可把它引伸到光频段。62年时有人在理论上探讨了这一问题,65年时就得以实现。

当频率为 ω_p 的强单色光去激励无损非线性介质时,在满足一定条件下,它可放大或分解成两束频率较低的光,即所谓信号频率 ω_s 和闲散频率 ω_i ,这就是所谓光参量放大与振荡。具体条件是:

$$\text{能量守恒: } \omega_p = \omega_s + \omega_i$$

$$\text{动量守恒: } k_p = k_s + k_i \quad (\text{即位相匹配})$$

这里 k_p 、 k_s 、 k_i 分别为泵光、信号及闲散光的波矢。光参量放大与振荡现象是一种分频过程,可看作合频的逆过程。

ω_s 和 ω_i 的值原则上同物质的固有频率无关,可根据位相匹配条件及谐振腔而选择。一般由改变非线性材料的参量如工作温度或角度,从而改变 k_s 和 k_i ,就可实现连续调频。目前这类现象,已经成为激光技术中重要的大范围连续调频手段,具有重要意义。

(4) 非线性喇曼效应^{16,17,28}

我们知道,所谓喇曼效应是将频率为 ω_p 的光射于一些物质时,其产生的散射光要发生频移。斯托克斯光为 $\omega_p - n\omega_v$,反斯托克斯光为 $\omega_p + n\omega_v$ 。这里 ω_v 为气体、液体分子的振动频率或晶体的光频声子频率, n 为整数。从前的喇曼散射是一种自发辐射现象,散射光是非相干的。然而,用激光作激发光源并在光强超过所谓阈值时,喇曼效应产生了质的飞跃,变成了受激喇曼散射。散射光具有激光的一些特性,故称之为喇曼激光。它是62年从红宝石调Q激光器中偶然发现的。

受激喇曼效应可描写成两束光波与一束光频声波间的参量过程。频率为 ω_s 的斯托克斯光同频率为 ω_v 的光频声波间的耦合,是由频率为 $\omega_p = \omega_s + \omega_v$ 的泵浦激光场所引起的。

受激喇曼效应的特点为:

- 对一定的物质而言,存在着一定的激发阈值。
- 所产生的受激喇曼线的强度比自发线高很多,可同泵浦激光相比拟。转换效率已达70%以上。
- 受激喇曼线具有高度的方向性。
- 受激喇曼线的宽度比自发喇曼线窄得多。
- 可观察到高次的斯托克斯线与反斯托克斯线。通过斯托克斯线与激光线相互作用,可产生受激反斯托克斯线。

除了上述的受激喇曼散射效应之外,还发现所谓反喇曼效应。当某些物质中,同时用一束强的单色光 ω_p 和一个高频的连续谱照射时,发生了在频率 $\omega_p + \omega_m$ 上的吸收,这里 ω_m 是物质的喇曼频率。反喇曼谱同受激喇曼发射谱是类似的,故受激喇曼效应的理论对发射与吸收二者都适用,但二者是有许多区别的。反喇曼谱没有阈值,吸收谱有较大的范围……。

非线性喇曼效应的研究,使喇曼光谱学产生了重大变革,不仅大大丰富了原有喇曼光谱学的内容与应用,而且已用受激喇曼效应于激光频率的变换。

(5) 其他受激散射的观察^{29,30}

除了非线性喇曼效应之外,用激光作光源还在布里渊、瑞利、米耶、汤姆逊等散射过程中进行了受激散射研究。以布里渊散射为例,我们知道,由声波和超声波可引起光的散射,产生了相当于微波或无线电波的频移,这就是所谓布里渊散射。过去所观察到的是自发辐射过程,散射的是弱的非相干光。但当强激光作用于物质时,产生了类似于受激喇曼散射的强的布里渊散射,即受激布里渊散射。它可看成光波与声波或超声波间的参量相互作用,由强的激光产生出有频移的散射光及声波。在这过程中产生的大功率的超声波,可用作探测手段。

(6) 强光引起物质折射率的变化^{26,27}

当强光通过非线性物质时,物质的折射率要产生与光强成比例的变化,例如 $n = n_0 + \delta n$, $\delta n = n_2 E^2 \ll n_0$ 。对在等相面上具有相同振幅的平面或球面波而言,折射率的变化仅导致相速的改变。但在波前上振幅有变化时将产生不同情况。光线会向高折射率区域弯曲,波前发生畸变。当光强沿光束径向有一定分布时,物质的折射率沿径向相应地形成一定的分布,形成所谓“类透镜”介质。若中心部份比周围部份折射率高,则产生聚焦作用,反之则产生散焦作用。当强度很高的激光的自聚焦作用与由于衍射而造成的发散作用相平衡时,则它自己自动压缩成极细的光束,光在它自己产生的丝状介质波导中传播而不发生束散,即产生光束的“自陷”。分析表明,自聚焦距离与场的振

幅成反比。因此当光脉冲射入物质时,它的不同部份将在光轴的不同点形成自聚焦,故“光丝”可解释为移动焦点的轨迹。

光束的自聚焦现象,从物理学的角度来看,是一种有趣现象。它往往会导致物质的破坏。但在非线性物质中,它往往会降低许多非线性现象的阈值,有助于非线性光学现象的观察,如对观察受激喇曼效应、受激布里渊散射就是这样。

(7) 多光子吸收过程^{9,31}

有的物质对某些低强度的光是透明的,但对同样波长的高强度的光不一定透明,它可同时吸收几个光子。激光出现之后,继观察到二次谐波后不久,就观察到双光子吸收现象,物质的能级间隔相当于两个光子的能量,即 $E_2 - E_1 = 2\hbar\omega$ 。这种现象在1930年时就在理论上预料到了,激光出现后才首先在 CaF_2 、 Eu^{2+} 中观察到。因双光子吸收的几率往往比吸收单光子情况低几个数量级,故用低强度的光是难以观察的。双光子吸收过程往往伴随着继发荧光。此外,极高功率的激光脉冲通过一些物质时,往往会出现多光子电离,多光子电子发射,多光子光电导,多光子光化学反应等现象。

目前双光子荧光现象已经成功地用于测量超短脉冲的宽度,也用在激光腔内作限制功率的元件。并且多光子效应为研究物质性质提供了许多新知识。

(8) 其他非线性光学过程^{36,23}

除上述过程之外,还有其他一些非线性光学过程,如非线性相干谐振现象(光子回声等),强光引起的谱线变化(饱和、变形、分裂、频移等),以及在光的调制、解调和强光产生物质破坏过程中所包含的非线性现象。

2. 非线性光学现象的起因

关于非线性现象的起因问题,已经由许多人作了理论分析¹⁹⁻²²。所用的方法有三条途径:

- 用经典电动力学的方法,把光学系数考虑成光强的函数而唯象地处理。
- 半经典方法,把光考虑成波,把物质系统用量子力学进行处理,计算高次相互作用。
- 量子电动力学的方法,电磁波与物质系统都量子化,计算高次辐射现象。

一般情况下,用半经典理论比较多。上述的非线性光学现象的起因是多方面的,但大多数同强光场引起的原子、分子的非线性极化性质有关,有的只涉及到非线性吸收性质。

(1) 物质的非线性极化性质

我们知道,当光在介质中传播时要发生相应的极化,物质的光学性质同极化性质有着密切的关系。物质的极化系数、折射率等为表征物质光学性质的重要参量。过去我们认为物质的电极化强度与光的电场强度成线性关系,其电极化系数与光场无关。在光强很低时,确实是这种情况。但是,严格地讲,物质的电极化除了与光场成线性关系的一次项外,还存在着与电场强度的二次方、三次方…成正比的高次项,即是说:

$$P_i = \sum_j X_{ij} E_j + \sum_{jk} X_{ijk} E_j E_k + \\ + \sum_{jkl} X_{ijkl} E_j E_k E_l + \dots$$

当非线性介质为各向异性晶体时,各次项电极化系数都是张量形式,第 n 次项的极化系数为 $n+1$ 阶张量。并且,在包含有共振效应的非线性光学现象中,因有吸收效应,非线性极化率为复数。由于非线性极化各次项所相应的系数,逐渐地下降几个数量级,故用传统光源时由于强度低而看不出高次项所产生的效应。然而,由于激光有极高的强度,其场强甚至可同原子、分子内场相比拟,因此高次项的效应可观察出来。并且,随着激光技术及非线性光学材料的发展,许多初期较弱的现象,目前转换效率已较高了。

显然,第一项 $\sum_j x_{ij} E_j$ 是线性项,只涉及到光在介质中的传播问题,不发生频率的变化。它所产生的是线性光学现象,迭加原理成立。

对二次项 $\sum_{jk} X_{ijk} E_j E_k$ 而言,它将使单色强光产生倍频;使两个不同频率的光产生混频(合频、差频)效应;当强光去激励无损非线性介质时,在一定条件下将产生光参量放大与振荡现象。在上述效应中,非线性介质是作为无损介质而起作用。物质的结构对所产生的现象的强弱有很大的影响,但其频率由外部条件决定。在这些现象中,要求光波间满足能量守恒与动量守恒,光波的位相关系对现象影响很大,它们是相干的非线性光学过程。

对三次项 $\sum_{jkl} X_{ijkl} E_j E_k E_l$ 而言,它的非线性系数为4阶张量,在实际的非线性材料中,一般是复数。它的虚数部份导致产生喇曼、布里渊、瑞利等散射现象及光束的双光子吸收。在无损介质中,三次项的极化率是实数,在此情况中将会产生三次谐波,与光强有关的物质折射率的变化引起的自聚焦或自散焦现象,光克尔现象等

对于更高次项的非线性极化所引起的现象,一般只在较特殊的情况下才能观察到。在大多数情况中,由它们所产生的物理效应,也可多次应用低次项非线性极化束产生。例如由四次项非线性极化可产生四次谐波,但它也可把二次谐波或三次谐波作中间步骤,分两步来完成。

(2) 共振效应的影响

前述的非线性光学现象,一般是对任意频率的光波都成立。然而,与现象有关的光频率或其组合值,与非线性介质的某对能级一致或很相近时,现象变得复杂起来。首先,非线性效应显著增大,由强光所引起的谱线的饱和、变形、分裂、频移等现象在共振或接近共振的条件下显著地表现出来。由于伴随着光的吸收,故非线性极化率为复数,它在共振点附近随频率产生急剧变化,在其所产生的现象中,往往由许多不能分开的过程混在一起。

四、影响非线性光学现象的几个重要因素

对非线性光学现象的实验研究,主要涉及到用作激励的激光器的性质、非线性介质及实验技术三个方面。因为上述三方面分别主要关系到产生非线性极化的场强及非线性极化率的大小,强光同非线性介质的相互作用及光波间的耦合等重要问题。

(1) 非线性光学中所用的激励光源

很明显,用作激励光源的激光器的性质,对非线性光学现象具有重大影响。对光源的基本要求是要有足够高的输出功率及良好的时间与空间相干性。当然,对不同的非线性光学现象及对不同的非线性介质而言,对光源的具体要求是不一样的,不能一概而论,应具体问题具体分析。

要求光源具有高的输出功率,是因为非线性光学现象一般随激励光功率增加而急剧增大,例如在光倍频现象中,倍频光功率密度就同基波功率密度的平方成正比。就激光器的状况而言,一般是固体激光器比气体激光器功率大,脉冲的比连续的大,而调Q的激光器比通常的激光器大。故在早期的实验工作中,主要用调Q的脉冲固体激光器。后来,随着连续激光器功率的提高,新的非线性介质的研制,以及实验技术的改进,用连续的气体 and 固体激光器作非线性现象的研究,也日益多起来,效果也不错。还应指出的是,锁模激光器的出现,可产生出脉冲宽度为微微秒量级的超短脉冲,它为非线性光学研究又提供了新的工具。在这样的脉冲作用下,非线性介质呈现出一些新

现象。

用相干光去激励非线性物质,主要是由于相干非线性光学现象的需要。激光的单色性好时,容易实现位相匹配,以及每个振荡模式的光子简并度高,从而可得到更强的非线性效应。激光的空间相干性好时,光束的发散度小,易实现近于理想的位相匹配,可增长引起非线性相互作用的有效相干长度。把发散角小的光束聚焦时,可得到高的功率密度,有利于非线性光学现象的增强。同时,用相干光作实验时容易操作,容易将实验结果同理论作比较。从相干性方面来看,气体激光器较好,它在某种程度上弥补了气体激光器一般功率密度较低的缺点,因而在相同功率的情况下,它可得到更强的非线性效应。然而,随着激光技术的发展,用选模技术也能从固体激光器中得到相干性很好的光。

(2) 对非线性介质的要求

从非线性光学的角度来看,一般对材料的基本要求是:

- a. 有高的非线性极化系数。
- b. 可使用的频带宽而且透明性好。
- c. 能以某种方式实现位相匹配。
- d. 能承受强光照射,不易产生光损伤。
- e. 晶体容易生长而且光学质量好,价格低廉。

从上述要求出发,我们可简略地分析一下对非线性材料的具体要求。

首先,物质的非线性极化系数,直接同它的微观结构有关。对非线性晶体材料来讲,从其对称性就可知道它对各阶极化张量的限制。例如,具有对称中心的物质,在电偶极子近似内,看不出会产生偶次谐波的分量,即极化矢量不包含电场的偶次方项。在二次项中非线性极化率是三阶张量,根据对称性就可推算出各分量的关系。

在非线性光学中一般涉及到较大的频率变化,此外从材料适应性大的角度来看,都希望非线性材料的使用频带宽。由于非线性介质一般是作为无损介质而起作用的,所以希望在使用频段内透明性好,这样不会对现象产生大的影响,也不易造成材料损伤。

在非线性极化所产生的相干非线性光学现象中,只有激励光所产生的极化场的位相,同它所产生的光的位相相同时,各部份极化场所产生的光才有互相增强的干涉效果。即是说,要求激励光与所产生的光,能以某种方式维持一定的位相关系,即所谓“位相匹配”。在非线性光学中,它是一种能获得高度能量转换的关键技术。为此,相应地对材料有一定要求。

此外,要求非线性材料有高度的光学质量,即应

力小,各种缺陷少。否则,不仅造成光波的损耗,还会影响光波间的相对位相关系及易造成材料的损坏。

(3) 非线性光学实验技术中的几个重要问题:

为有效地产生非线性光学现象,实验技术上必须正确地使激励光同非线性物质充分作用,因此有几个问题必须充分注意。

a. 位相匹配技术的使用。

在相干非线性光学现象中,位相匹配技术的提出和使用,对非线性光学的发展起了重要作用。在实验技术上必须造成位相充分匹配的条件。相应地对激励光的相干性和强度,对非线性材料的性质及加工等方面都有许多要求。

目前有几种方式可实现位相匹配。最常用各向异性晶体中,同一波面法线方向上传播的光波有两个正交的偏振态,利用它们的折射率不相等及随频率而改变的现象来实现位相匹配。此外也用将激光通过适当光学系统送入非线性晶体的介质波导管中,使其发生多次全反射而实现所谓矢量位相匹配。也有用非线性材料的反常色散及利用人工的周期性结构来实现位匹配。

b. 正确地选择和使用光源与非线性材料。

由于有效地产生非线性现象所涉及到的因素很多,因此在选择和使用光源及材料时,必须综合地全面地作具体分析。举个例子来说, LiNbO_3 在1.06微米波长上的二次项非线性系数比KDP的大一个数量级,而且能实现 90° 的位相匹配,从而避免了光孔径效应,那末是不是说不管用什么激光器它所产生的倍频效率都比KDP高呢?情况不是这样。对钛玻璃激光器而言,它的振荡谱线较宽,有的宽达几十埃,若用 LiNbO_3 来对它产生倍频,效率却很低,因它的匹配情况随波长变化较大,对钛玻璃激光的宽谱线不能充分匹配。反之,KDP虽然非线性系数低,但它的匹配情况随波长变化不大,对方向性好的钛玻璃激光能较好的匹配,从而达到较高的转换效率。在文献40中用限制衍射的高亮度的钛玻璃激光器在KDP晶体中产生了功率达1千瓦的谐波,效率达到70%。而用 LiNbO_3 时,效率只有百分之几。加之,考虑到 LiNbO_3 易产生光损伤,光学质量不如KDP等因素时,对钛玻璃激光倍频用KDP为好。然而,YAG:Nd激光器谱线宽度较窄,用 LiNbO_3 就能较好地位相匹配,从而获得较高的转换效率。

五、非线性光学发展概况

自61年发现激光倍频现象之后,很快地引起了许

多物理工作者对非线性光学研究的极大兴趣,相应地开展了大量的实验与理论工作。从非线性光学十多年来的发展情况来看,大体上可分为两个阶段。在前五、六年期间内,主要是集中在探索新的非线性光学现象,研究其基本性质和建立非线性光学的基本理论。在这阶段中,主要的非线性光学现象相继发现,并沿多种途径进行了理论分析。其后,主要集中于深入研究已发现的非线性光学现象,以期使非线性光学向应用方面发展。为此,研制了一些优良的非线性光学材料,改进了增强非线性光学现象、提高转换效率的实验技术,从而使一些现象逐渐向实用靠近。上述状况,从附表所列举的非线性光学的主要事件就可看出。

在后一阶段中,向应用光学领域发展所研究得最多的,大体有如下几个方面:

(1) 激光倍频技术。这是研究最多、最为成熟的基本非线性光学现象。最初的转换效率极低,随后由于位相匹配技术的提出和使用,优良的非线性材料的研制及实验技术的改进,转换效率已经大大提高。在68年时,在1.1瓦的YAG:Nd连续激光器中,用 $\text{Ba}_2\text{NaNb}_5\text{O}_{15}$ 作腔内倍频材料,获得了近100%的转换效率³⁸。用KDP,ADP在0.5145微米的氩离子激光腔中倍频,获得50%的转换效率⁴²。69年时,用KDP对钕玻璃激光倍频,达到70%的峰值转换效率⁴⁰。70年用 LiIO_3 对红宝石激光倍频,效率达到40%以上⁴³。从研究的情况来看,对巨脉冲激光器一般采用腔外倍频。而对功率密度较低的连续或脉冲激光器而言,一般采用腔内倍频,近几架发展起来了腔内双通倍频技术⁴⁶。目前常用的倍频材料有ADP、KDP、 LiNbO_3 、 LiIO_3 、 $\text{Ba}_2\text{NdNb}_5\text{O}_{15}$ 等。

从目前倍频技术的发展来看,除继续研究新材料外,主要着眼于研究新的位相匹配技术,以期在更多的材料中能有效地进行倍频。此外,在光波导中的倍频也研究较多。

当前倍频技术已成为激光技术中变换频率的重要手段,除了用它直接把激光频率作大幅度的向上转换之外,还常常用它作为光参量振荡器中提供泵频。此外用二次谐波测量有关的非线性系数,测量微微秒脉冲的宽度。

(2) 光参量振荡器的研究⁴¹。它作为激光技术中的一种大范围连续调频的重要手段,很受人重视。十年来在理论与实验方面作了大量工作,目前用光参量振荡器已能作出从紫外到近红外的连续调频光源。例如,到70年时,用产生13种波长的YAG:Nd激光器,把 LiIO_3 置于腔内倍频作泵,用 LiNbO_3 作参量振

荡晶体,可在0.54—3.7微米范围内连续调频⁵⁰。再用ADP倍频,就可扩展到在紫外区调频。转换效率已超过50%。

对于光参量振荡器,目前主要着眼于:

a. 改善转换效率和提高工作的稳定性。最初的工作中,差不多都是将参量振荡晶体放在激光腔外,近期的工作正向激光腔内的光参量振荡方面发展。在文献⁵¹中,在重复频率Q开关的1.06微米的 Na_2YAG 激光器中,用 LiNbO_3 作腔内参量振荡,平均功率达到350毫瓦,效率高达75%。目前无论连续还是脉冲参量振荡器都达到百分之几十的效率。在提高稳定性方面,已作了许多理论与实验工作。

b. 研究快速、准确和大范围调谐的方法。目前用作参量振荡器调频的方法主要有改变晶体温度、角度、以及用电光和声光效应等方法。温度调频的范围较大,但很缓慢;加电场能快速调频,但范围一般较小;相对而言,目前用改变晶体取向来调频的方法,具有范围大,而且快速的优点⁵²。今后着眼于用电光效应、声光效应实现大范围的快速、准确调谐。

c. 研究有高的非线性系数和高质量的晶体。目前常用的晶体,如 LiNbO_3 、 $\text{Ba}_2\text{NaNb}_5\text{O}_{15}$ 、ADP、KDP等,虽然能在一定程度上满足要求,但各有其局限性。研究能全面满足要求的优良非线性材料,是目前在这方面的重要努力方向之一。

(3) 频率上转换技术的研究。要深入开发红外波段,关键在于要有相应的辐射源和探测技术。激光技术的出现,一方面为在红外区特别是中、远红外区提供强的辐射源开辟了广阔前景,另一方面又发展了用来探测红外辐射的所谓频率上转换技术。以往的红外检波器灵敏度很低,而且在低温下工作(4.2°K到77°K),很不方便。而可见区的光检波器灵敏度很高,且在室温下工作。例如在5000埃附近,几个光子/秒的功率能探测出,而在10微米附近,要 10^8 光子/秒才能探测。显然,把待探测的微弱红外光上转换到可见区后探测,是有许多优越性的。目前研究较多的上转换技术,是合频的一种特殊情况。它与通常的合频情况不同,在上转换中工作的两束光强度相差很大,待测的红外光一般是很微弱的,而另一束光是强的激光束,它的频率比待测的红外光高很多。由于这种技术对开发红外具有重要意义,所以自67年以来这方面的研究很引人注目^{37,48,49}。

(4) 受激散射过程的研究。当光波同固体、液体或气体相互作用时,会产生一系列特征性的散射现象。在高强度激光束的作用下,原则上每个自发散射过程都有其相对应的受激散射。十多年来在这方面作

非线性光学发展大事记

年份	主要事件	参考文献
1961年	1. 首先用红宝石脉冲激光器在晶体中观察到二次谐波, 效率为 10^{-11} 2. 在掺 Eu^{2+} 的 CaF_2 晶体中观察到双光子吸收和继发光	1, 9.
1962年	3. 用克尔盒作红宝石激光调Q实验时, 首先观察到硝基苯中在7670埃上的受激喇曼发射 4. 观察到光的拍频现象 5. 位相匹配的提出, 并在实验中得到证明, 在KDP中作实验效率比晶体中提高2000倍 6. 在KDP晶体中观察到光整流效应 7. 观察到光混频(合频、差频)现象 8. 在氟化钙中观察到产生三次谐波和加直流场造成反演对称的破坏而引起谐波的增强 9. 提出光参量放大和振荡的理论 10. 非线性光学基本理论的建立	16, 17 10, 57 8, 11, 18, 15, 8, 39, 12, 13, 14, 19—22
1963年	11. 首先在 CS_2 中观察到吸收系数与功率有关 12. 首先在非线性质表面观察到反射谐波	23, 24,
1964年	13. 在许多液体中发现折射率与光强有关 14. 观察到光束的自聚焦现象 15. 观察到逆喇曼效应 16. 观察到受激布里渊散射 17. 观察到三光子吸收 18. 研制出可 90° 位相匹配的材料 LiNbO_3	26, 27, 28, 29, 30, 31, 54,
1965年	19. 光参量振荡器在 LiNbO_3 、KDP、ADP等材料中实验成功	32—35
1966年	20. 发现光子回声现象	36,
1967年	21. 观察到从红外到可见光的上转换 22. 研制出优良非线性光学材料 $\text{Ba}_2\text{NaNb}_5\text{O}_{15}$	37, 55,
1968年	23. 腔内倍频达到100%的转换效率	38,
1969年	24. 研制出优良非线性材料 LiIO_3	56,

了大量研究。早期的工作主要是定性地解释现象, 而近期的工作中, 对现象作了许多定量的研究, 理论与实验比较一致。

研究较多的是受激喇曼、布里渊、瑞利等散射过

程。受激散射过程的研究, 对了解光和物质的相互作用过程及物质的性质, 具有重要意义。此外, 利用受激喇曼散射过程来变换激光频率、分析物质。

(5) 光自聚焦、散焦效应的研究。这些现象是由强光引起物质折射率的变化及光束横截面上强度分布不均匀, 从而形成“类透镜”介质所引起的。从物理学科上来看是一种有趣现象, 很吸引注意。从实用上来看, 研究强光作用对材料的破坏机理, 以及物质中的一些非线性光学现象, 都有重要意义⁵³。

(6) 优良的新非线性材料的研制。十多年来, 非线性光学材料的研制, 对非线性光学的发展起了重大促进作用。然而, 现有的材料虽然在某些方面一定程度上满足了实验工作的需要, 但它们往往具有许多局限性。因此, 研制能比较全面满足实用要求的优良非线性材料, 是非线性光学向实用发展的关键问题之一。目前在有关物质的光学非线性起源方面作了些理论工作, 以期能在理论指导下进一步开展新材料的研制。

(7) 多光子光谱学的研究。它是近些年来出现的光谱学的一个新的、有用的分支。其中, 研究最多的是双光子光谱学。包括多光子吸收谱、荧光、谱多光子光电发射和光电导、多光子光化学反应等方面。这些现象的研究, 不仅对了解物质的性质有重要意义, 而且还得到一些实际应用。如用双光子荧光测超短脉冲宽度; 用双光子吸收元件放入激光腔中, 产生与强度有关的损耗, 从而控制激光束; 用双光子吸收束对物质作选择激励, 并已用来分离同位素。

六、结 束 语

综上所述可看出, 非线性光学是光学的一个重要的新的学科分支。无论从理论还是从实用上来看, 研究它都具有重要意义。十多年来, 它经过初期的现象和理论研究阶段, 近期正向应用方面发展。为此, 优良的非线性材料的研制及实验技术的进一步改进, 是其关键。

参 考 文 献

1. P. A. Franken, et al, Phys. Rev. Lett., Vol.7, pp 118—119, August 1961.
2. P. A. Franken and J.F. Ward, Rev. Mod. Phys., Vol.35, pp.23—29, January 1963.
3. P. S. Pershan“Nonlinear optics”, in Progress in optics, Vol. 5, New York; Interscience, Amsterdam, North—Holland, 1966.

4. R. W. Minck, R. W. Terhune, and C. C. Wang, Proc. IEEE, Vol. 54, №10, October, 1966.
5. N. Bloembergen, Nonlinear Optics, New York, Benjamin, 1965
6. F. Zernike and J. E. Midwinter, Applied Nonlinear Optics, John Wiley & Sons New York/Sydney/Toronto/London, 1972.
7. 李荫远, 杨顺华, 非线性光学, 科学出版社, 1974.
8. J. A. Giordmaine, Phys. Rev. Lett., 8, 19, 1962.
9. W. Kaiser, C. G. B. Garrett, Phys. Rev. Lett., 7, 229, 1961.
10. M. Bass, et al., Phys. Rev. Lett., 8, 18, 1962.
11. P. D. Maker, Phys. Rev. Lett., 8, 21, 1962.
12. K. Kington, Proc. IRE, Vol. 50, 472, 1962.
13. С. А. Ахманов, Р. В. Хохлов, ЖЭТФ, том 43, Стр 351, 1962.
14. N. Kroll, Phys. Rev. Vol. 127, P 1207, 1962.
15. A. W. Smith and N. Braslau, IBM J. Res. Develop. 6, 361, 1962.
16. E. J. Woodbury, and W. K. Ng, Proc IRE Vol. 50, 2367, 1962.
17. G. Eckhardt, et al., Phys. Rev. Lett., Vol. 9, 455, 1962.
18. M. Bass, et al., Phys. Rev. Lett., Vol. 9, 446, 1962.
19. J. A. Armstrong, et al., Phys. Rev., Vol 127, 1918, 1962.
20. N. Bloembergen, P. S. Pershan, Phys. Rev. Vol. 128, 606, 1962.
21. D. A. Kleiman, Phys. Rev., Vol. 126, 1977, 1962.
22. D. A. Kleiman, Phys. Rev., Vol. 128, 1761, 1962.
23. J. A. Giordmaine, J. A. Howe, Phys. Rev. Lett., Vol. 11, 209, 1963.
24. J. Ducuing, N. Bloembergen, Phys. Rev. Lett., Vol. 10, 474, 1963.
25. N. I. Adams, P. B. Schoefer, Appl. Phys. Lett., Vol. 3, 19, 1963.
26. P. D. Maker, et al, Phys. Rev. Lett., Vol. 12, 507, 1964.
27. R. Y. Chiao, E. Garmire, C. H. Townes, Phys. Rev. Letters, Vol. 13, 479, 1964.
28. W. J. Jones, B. P. Stoicheff, Phys. Rev. Lett., Vol. 13, 657, 1964.
29. R. Y. Chiao, et al., Phys. Rev. Lett., Vol. 12, 592, 1964.
30. E. Garmire, C. H. Townes, Appl. Phys. Lett., Vol. 5, 84, 1964.
31. S. Singh, L. T. Bradley, Phys. Rev. Lett., Vol. 12, 612, 1964.
32. J. A. Giordmaine, R. C. Miller, Phys. Rev. Lett., Vol. 14, 973, 1965.
33. C. Wang, G. Racette, Appl. Phys. Lett., Vol. 8, №8, 1965
34. С. А. Ахманов, и др., письма ЖЭТФ, том II, 458, 1965.
35. С. А. Ахманов, и др., письма ЖЭТФ, том II, 300, 1965.
36. I. D. Abella, N. A. Kurnit, S. R. Hartmann, Phys. Rev., Vol. 141, 391, 1966.
37. R. Miller, W. Nordland, IEEE J Quantum Electronics, Vol. QE-3, 642, 1967.
38. J. E. Geusic, et al., Appl. Phys. Lett., Vol. 12, 306, 1968.
39. R. W. Terhune, et al., Phys. Rev. Lett. Vol. 8, 404, 1962.
40. W. F. Hagen, P. G. Magnante, J. Appl. Phys., Vol. 40, 219, 1969.
41. S. E. Harris, Proc. IEEE. Vol. 57, 2096, 1969.
42. M. W. Dowley, Appl. Phys. Lett., Vol. 13, 395, 1968.
43. G. Nath, et al., Appl. Phys. Lett. Vol. 17, 286, 1970.
44. C. L. Tang, P. P. Bey, IEEE J. Quantum Electronics, Vol. QE-9, 9, 1973.
45. E. M. Conwell, IEEE J. Quantum Electronics, Vol. QE-9, 867, 1973
46. D. G. Gonzalez, S. T. K. Neih, W. H. Steier, IEEE J. Quantum Electronics. Vol. QE-9, 23, 1973.
47. Y. Yacoby, R. L. Aggarwal, R. Lax, J.

在非线性介质中光频谐波的 产生和激光混频过程

对激光器问世以来的十年间, 在一些领域中所取得的重要结果, 根据可用的文献作了简略的报道。这些领域是连续和脉冲激光在许多材料内反射和透射中的二次、三次及更高次谐波的产生、混频过程, 以及液体、气体、晶体和其他材料的非线性光学性质。文章强调较新和较有启发性的实验结果, 以及它们同其他非线性现象的关系。

1. 引言

在1961年, Franken及其同事们作了一个精心设计的实验[1], 在这个实验中他们证明了, 聚焦在石英晶体中的波长为6943埃的红宝石激光出来之后包含着少量波长为3471.5埃的二次谐波。这个现象起源于物质中的非线性光学性质。它的发现, 成为巨大发展的起点, 由于激光技术的迅速进展而得到进一步增强。这导致探测许多新奇的光学效应, 它们后来已在许多专著[2—5]和评述性文章[6—15]中得到论述。这里, 我们打算讨论非线性光学过去十年间, 在产生光谐波和激光混频范围中所获得的比较重要的理论与实验结果。关于相干非线性过程的理论要点, 可参阅 Armstrong等人[16], Bloembergen 和 Pershan[17], Akmanov和Khokhlov[2] 及一些其他作者[18—24]的基础工作。

1.1, 线性和非线性光学过程

寻常光在透明体中的传播, 并不影响它的光学性质, 因为它在内部感生的电极化 $P(r, t)$, 是在空间点 r 和时刻 t 以频率 ω 振荡的光波电场强度 $E(r, t)$ 的一个线性函数。 $P(r, t)$ 和 $E(r, t)$ 间的线性关系, 直接导致洛伦兹的经典电子论[25], 在那儿原子是作为各向同性的谐振子处理的, 象在量子力学中微扰计算的一级近似中那样[26]。对线性近似而言, 马克斯威尔方程的解满足迭加原理。这个原理说: 两列电磁波同时通过一块线性介质时, 彼此独立地传播而不发生相互作用。因此, 在线性的光学透明体中, 电磁波的传播不发生畸变, 折射率只同介质的性质及热力学状态有关, 而同入射光的强度无关。

只要光学上所研究的介质是用非强光探测法研究的, 并且不受外场或力的影响, 则其所有光学现象和规律都是线性的。一个光学各向同性的物体, 处在外电场或磁场中时, 其折射率发生变化, 而成为光学各向异性的物体。克尔发现电双折射是在1875年, 而科登和莫登发现磁双折射是在1907年。这两个效应的经典理论, 归功于Voigt[27]和Langevin[28], 并随后由许多作者[26, 29—31]加以发展。更早, 在1846年, 法拉第发现偏振光在外加磁场方向通过介质时, 光的偏振面发生旋转[26]。受到外部电场作用各向同性

Appl. Phys., Vol.44. 2180, 1973
48. R. F. Lucy, Appl. Optics. vol. 11, 1329. 1972.
49. J. Warner, Optoelectronics. Vol.3, 37 1971
50. R. W. Wallace, S. E. Harris, Laser Focus. Vol.6, 42, 1970
51. E.O. Amman, et al., Appl. Phys. Lett., Vol. 16, No.6, 1970
52. R. Basu, W. H. Steier, IEEEJ. Quantum Electronics, Vol. QE-8, 693, 1972

53. M. M. T. Loy, Y. R. Shen, IEEEJ. Quantum Electronics, Vol. QE-9. 409, 1973
54. G. D. Boyd, et al., Appl. Phys. Lett., Vol. 5, 234, 1964
55. J. E. Geusic, et al., Appl. Phys. Lett., vol. 11, 269, 1967.
56. G. Nath, S. Hanssuhl. Appl. Phys. Lett. Vol.14, 154, 1969.
57. R. C. Miller, A. Savage, Phys. Rev., 128 2175, 1962.

物体, 没有显现与法拉第效应相对应的现象, 但各向异性的介质却表现出所谓 Pockels 效应的线性电光现象[32]。还有其他外部作用, 例如机械应力、液流、声场等等都引起光的折射率变化[30, 33—35], 并产生各种线性光学过程。所有这些现象的光学有时被称为参量光学, 目的在于强调外部非光学参量在它们中的作用。

然而, 当很高强度的光通过一个透明体时, 它的折射率和电极化率变得同光束强度有关; 这的确为许多人按理论预测所直接观察到了[31, 36, 37], 当使用巨脉冲红宝石激光时, 就是这种情况[38—40]。连续或脉冲工作的激光器发射一束平行的单色光, 它在时空上是相干的, 并且传送巨大能量密度的光流。这种强度很高的激光束, 用普通光决不能获得, 它使折射率随光束的电场强度 $E(r, t)$ 而改变。能在介质中引起光学非线性的这样强度的电磁波, 当它在介质中传播时本身要发生畸变。由傅利叶频谱分析可知, 基频 ω 的初始波现在还伴随着二倍频率 2ω 、三倍频率 3ω , 以及更高次谐波的谐波分量[2—6]。

1.2, 非线性极化

受到很强电磁辐射作用的介质, 会显示电极化 $P(r, t)$ 和磁极化 $M(r, t)$, 它们在一般情况下是电场和磁场强度 $E(r, t)$ 和 $H(r, t)$ 二者的非线性函数。随时间 t 和空间坐标 r 简谐变化的电场, 能表示成傅利叶分量的形式, 磁场也同样。

$$E(r, t) = \sum_s E(\omega_s, K_s) \exp\{i(K_s \cdot r - \omega_s t)\} \quad (1)$$

这里的 ω_s 是角振荡频率, 而 K_s 是第 s 个模的波矢。在 (1) 中求和遍及所有频率和波矢, 正的和负的二者, 且 $\omega_{-s} = -\omega_s$, $K_{-s} = -K_s$, 并且, 对傅利叶变换 (场振幅) 而言, $E^*(\omega_s, K_s) = E(-\omega_s, -K_s)$ 。

只要电场强度 $E(r, t)$ 不是过份的大, 在介质中所感生的电极化就能展开成一个幂级数:

$$P(r, t) = \sum_{n=1}^{\infty} P^{(n)}(r, t) \quad (2)$$

$P^{(n)}(r, t)$ 定义为第 n 次电极化, 它可表示成它的傅利叶频率分量:

$$P^{(n)}(\omega_{n+1}, K_{n+1}) \exp\{i(K_{n+1} \cdot r - \omega_{n+1}t)\} \quad (3)$$

在这阶段上, 我们仅限于它们同电矢量的关系, 对偶极子极化 (3) 的第 i 个分量我们得到:

$$P_i^{(n)}(\omega_{n+1}, K_{n+1}) = X_{i j_1 \dots j_n}^{\omega_{n+1}} E_{j_1}(\omega_1, K_1) \dots E_{j_n}(\omega_n, K_n) \quad (4)$$

这里, 在重复脚标 $j_1 \dots j_n$ 上求和是不明显的, 并且

$$X_{i j_1 \dots j_n}^{\omega_{n+1}} = X_{i j_1 \dots j_n}(-\omega_{n+1}, \omega_1, \dots, \omega_n)$$

是第一个第 n 次非线性极化率张量。非线性极化张量同振荡频率的关系, 被称为时间或频率色散, 而它同波矢的关系被称为空间色散。当波在介质中相互作用时, 发生时空同步:

$$\omega_{n+1} = \sum_{s=1}^n \omega_s \quad (5)$$

$$K_{n+1} = \sum_{s=1}^n K_s \quad (6)$$

在量子力学的解释中, (5) 式表示光子的能量守恒原理, 而 (6) 式表示光子的动量守恒原理。有些时候, 要考虑对条件 (6) 的小偏离 ΔK , 且 $|\Delta K| \ll |K_{n+1}|$ 。

对许多各向同性和各向异性的物体而言, 高次电极化 (4), 同样地磁极化及交叉 (电-磁和磁-电) 极化, 已经从唯象和量子力学两个途径讨论了[16—24], 并为非线性光学提供了理论基础[2—15]。

(1) 到 (6) 式说明在介质中相互作用的不同电磁波的混频过程, 特别是, 它们可描述产生光学谐波的现象。当 (1) 式中的电场之一很强时, 或者如果介质还受到一个强度大大超过 (1) 中的电场且泵频 ω_p 同 ω_s 可比拟或 $\omega_p > \omega_s$ 的泵浦电场

$$E_p(r, t) = E(\omega_p, K_p) \exp\{i(K_p \cdot r - \omega_p t)\} + C.C. \quad (7)$$

的作用, 就能得到电磁波的参量相互作用。除了参量相互作用波的这种放大之外, 如果 $\omega_p \ll \omega_s$, 还能用非线性介质调制光波。

2. 二次光学过程

频率为 ω_1 和 ω_2 及波矢为 K_1 和 K_2 的两列电磁波, 在介质中感生出二次电偶极极化:

$$P_i^{(2)}(\omega_3, K_3) = X_{ijk}^{\omega_3} E_j(\omega_1, K_1) E_k(\omega_2, K_2) \quad (8)$$

这里, 就 (5) 和 (6) 而言, 三列波合作的时空同步条件为:

$$\omega_3 = \omega_1 + \omega_2 \quad (5a)$$

$$K_3 = K_1 + K_2 + \Delta K \quad (6a)$$

对定义二次非线性极化率的三阶张量 $X_{ijk}^{\omega_3} = X_{ijk}(-\omega_3; \omega_1, \omega_2)$ 而言, 下面的空-时互换对称关系得以满足[8, 16]:

$$X_{ijk}(-\omega_3; \omega_1, \omega_2) = X_{ijk}(\omega_1 - \omega_3, \omega_2) = X_{kij}(\omega_2, -\omega_3, \omega_1) \quad (9)$$

这些关系使我们对标志实验参考系统的空间坐标 X 、 Y 、 Z 的各个脚标 i, j, k , 能同时任意互换频率 $\omega_3, \omega_1, \omega_2$ 。

在没有色散和吸收的非旋光性介质中, 张量 X_{ijk}

能看成在所有脚标 i, j, k 中全部对称, 并且只在没有对称中心的物体中才有非零的张量元。这种 Kleiman 对称判据[18]把独立的张量元 X_{ijk} 的数目从27个减少到10个。进一步减少独立张量元的数目取决于物体的特定晶体对称性, 并类似在压电张量情况中那样进行[41, 42]。在透明的旋光体中, 张量 X_{ijk} 可分成 $S_{ijk} = (X_{ijk} + X_{ikj})/2$ 部份及 $A_{ijk} = (X_{ijk} - X_{ikj})/2$ 部份, 在脚标 j 和 k 中分别是对称和反对称的。在天然各向异性物体中, 属于非对称部份 A_{ijk} 的二次效应, 同属于对称部份 S_{ijk} 的二次效应相比较, 是微不足道的。另一方面, 在没有对称中心的各向同性物体, 例如光活性液体中, 对称部份不存在, $S_{ijk} = 0$, 而引起两列频率不同的波混频的唯一因素存在于反对称部份 A_{ijk} , A_{ijk} 在这种情况下不为零[23]。Akhmanov 和 Khokhlov[2], Butcher[4], 及 Giordmaine[23]对所有晶系, 以及对岩石和各向同性物体作了一个张量的非零元 X_{ijk} 的完整列表。

2.1, 二次谐波产生的条件

当在 K 方向上传播的一束(基)频率为 ω 的波, 入射于没有对称中心的非线性介质时, 在介质中 r 点处频率 2ω 上感生的极化给出如下[10]:

$$P_i^{(2)}(2\omega, r) = X_{ijk}^{2\omega} E_j(\omega, r) E_k(\omega, r) \quad (10)$$

时-空同步条件现在为:

$$\omega_h - 2\omega_f = 0 \quad (5b)$$

$$\Delta K = K_h - 2K_f = \left(\frac{2\omega}{C}\right) (n_h - n_f) \quad (5b)$$

这里 ω_f , K_f , n_f 是基波的频率, 波矢和折射率, 而 ω_h , K_h , n_h 分别是谐波的频率, 波矢和折射率。

二倍频率的极化波(10), 在介质中沿着它的路程在各个时刻产生一个电场强度为

$$E_i(2\omega, r) \approx X_{ijk}^{2\omega} E_j(\omega, 0) E_k(\omega, 0) \left\{ \frac{1 - \exp i \Delta K \cdot r}{\Delta K} \right\} \quad (11)$$

的二次光谱波[10]。按照此式, 在 $\Delta K = 0$ 时(使波矢匹配, 即, 如果 $n_h = n_f$) $E(2\omega, r)$ 随距离 r 线性增长, 直到基波变得很微弱。当 $\Delta K \neq 0$ 时, (11)式右方括弧内的项表示 $E(2\omega, r)$ 作为距离 r 的函数而周期性地变化, 其变化周期由位相相干长度所决定[10]:

$$L_{\text{相干}} = \frac{\pi}{\Delta K} = \frac{\lambda}{4(n_h - n_f)} \quad (12)$$

根据(11)式, 在 r 点处光的二次谐波的强度为[14]:

$$I(2\omega, r) \approx (X^{2\omega})^2 \left\{ \frac{\sin \frac{1}{2} \Delta K r}{\frac{1}{2} \Delta K} \right\}^2 I^2 \quad (13)$$

I 表示入射波的强度。

根据13式, 我们至少可用三种方式来增加二次谐波强度, 即:

(I) 使用巨脉冲激光器, 以提供大的强度 I 。

(II) 使用具有大极化系统 $X^{2\omega}$ 的强非线性晶体。

(III) 依靠基波与二次谐波相速相等($\Delta K = 0$)条件。

Giordmaine[43]和Maker等人[44], 为了使基波光束的光子转换成二次谐波光束光子的量子产额大大增加, 独立地提出了不同的, 巧妙的折射率匹配方法。他们的方法是根据同步条件(5b)和(6b), 以及表达式(11)到(13)。想法是: 用适当取向而有足够双折射的天然各向异性晶体, 以获得在一个方向偏振的激光束同另一方向偏振的它的谐波光束间的折射率匹配。

从(12)式看出, 随着波矢差 ΔK 的减小, 相干长度增加, 从而使能量从基波转换成二次谐波的路程长度增加。增加 $L_{\text{相干}}$ 的一种成功的方法是用晶体的适当的双折射来补偿色散效应。在 $\Delta K = 0$ 时, 转换产额将随距离的平方单调地增加, 直到100%, 把全部能量从基波转换成谐波[10]。因此, 在位相匹配的条件下, 给定频率 ω 的光转换成 2ω 的光是一个高效过程; 在实践中可获得高于20%的转换效率, 再凭借串级放大, 二次谐波的转换产额能上升到30—35%。[45]。某些实验中显现转换饱和[46], 这主要是由于双折射对二次谐波相互作用长度的限制, 造成基波能量和二次谐波能量在稍微不同方向上传播[47]*。

2.2、透射光中二次谐波的产生

在佛朗克等人[1]最初的实验之后, 依靠脉冲晶体激光器, 以及半导体和气体脉冲与连续工作的激光器, 已经在许多压电和铁电晶体中, 以及其他非线性材料中观察到光的二次谐波。我们现在将讨论在透射光中产生二次谐波的一些较重要的实验结果。

用敏激活的钨酸钙($\text{CaWO}_4:\text{Nd}^{3+}$)晶体激光器, 发射1.0582微米波长的光, 它很适于观察波长位于人眼高度灵敏区域 r 的5291埃二次谐波。Miller[48]采用了这种类型的一台激光器来观察石英、铁电晶体 BaTiO_3 、KDP、ADP、 CdS [49]以及强非线性晶体 LiNbO_3 和 LiTaO_3 晶体[50]中的二次谐波。Geusic等人使用一台发射波长为1.064微米光的、低度聚焦而连

* 译者注: 关于二次谐波转换效率问题, 68年时在连续YAG激光器中已接近100%的转换效率, 在69年时脉冲敏玻璃激光器在KDP中的转换效率已达到75%

续泵浦的重复频率Q开关Nd:YAG激光器,在Ba₂NaNb₅O₁₅和K₂Li₄NbO₃中观察到在5320埃的二次谐波。使用红宝石激光器(6943埃)和掺钕激光器(1.06微米),已研究了在一些新奇的强非线性材料,即HfO₂[52]和LiIO₃[53]中的二次谐波[53]。最近,Jerphagnon[54]用一个带声光Q开关系统的Nd³⁺:YAG激光器,修正了由Maker镶边技术[44]获得的LiIO₃的非线性极化系数的早期值。又Gurski[55]报导了在高温LiNbO₃或Ba₂NaNb₅O₁₅中的同时锁模和准连续的二次谐波,这个结果是用一台Nd³⁺:YAG激光器,由非线性介质的电光调制来获得的。最近,观察到在KDP和HfO₂中产生的波长为4730埃的兰色光,它是Nd³⁺:YAG激光器的9460埃谱线的内部Q开关的二次谐波[56]。

Graja[57], Kurtz[58]和Rez[59]研究了晶体粉末中的二次谐波,这样就省掉了麻烦的单晶制备手续。粉末法简单而方便,它使得有可能迅速评价许多新的非线性材料的光学性质,特性是表现出强非线性和强烈产生二次谐波的有机染料晶体的光学性质。

气体激光器(连续和脉冲的),尽管它们功率低,在产生二次谐波时给出的相干长度比从红宝石激光器所得的大几个数量级。使用气体激光器使得在研究二次谐波的产生中能获得更高的准确度,以便得到量子产额和非线性极化率的定量数据,以及对倍频的频率及谐波线宽的准确度有一个比较准确的测量。Ashkin等人[65]使用He-Ne气体激光器的1.526微米的红外跃迁谱线,以聚焦和非聚焦方式观察了连续的二次谐波,并重新测量了KDP的二次极化率分量d₃₆,发现它的值比用红宝石激光器测量的值大五倍[43, 44]。Pater[66]用CO₂激光器的聚焦的10.5915微米的基频连续波,观察了在Te晶体中、闪锌矿型晶体(InAs, ZnS等)中、六方晶体(CdS)和三方晶体(Se)中5.2958微米处产生的二次谐波。Bjorkholm和Siegman使用了工作在6328埃的连续He-Ne气体激光器的最佳聚焦光束,对ADP晶体中产生的二次谐波作了准确的绝对测量[67]。同样的激光器也被用来观察压电的BeSO₄·4H₂O晶体中产生的二次谐波[68]。

Rabin和Bey[69]讨论了天然旋光性晶体中产生二次谐波的理论,并推导了新的位相匹配条件。Siman和Bloembergen[70]从实验上研究了在立方晶系23的旋光性晶体NaClO₃和NaBrO₃中产生二次谐波,对相干长度所获得的(12)式的替代式为

$$L_{\text{相干}}^{\pm} = \frac{\lambda}{4(n^{\pm}_{\text{谐}} - n^{\pm}_{\text{基}})} \quad (14)$$

两个不同的值相应于右旋和左旋圆偏振光。

对用聚焦和非聚焦激光束来产生二次谐波的许多其他问题,也作过研究[71, 72];同时产生两束倍频波,在双轴晶体内产生二次谐波中的圆锥形折射[74],以及在压电晶体中温度和畴结构对产生二次谐波的影响[48, 60, 61, 75, 76]。特别值得注意的是Kleiman等人的长篇文章[71],它包括用聚焦激光束产生二次谐波的许多实验与理论问题的详细研究。

2.3, 在反射光中产生的二次谐波

按照Bloembergen和Pershan建立的非线性介质边界上产生谐波光的一般理论,谐波的产生不仅限于透射光中的实验,而且也扩展到反射光。关于这个现象的本质的有力说明和文章评述,直到65年才在Bloembergen的文章中找到[77]。

频率为 ω 的入射激光束,折射后,感生谐波频率 2ω 的极化,在没有反演中心的物体中,它由(10)式给出。在反射中产生的二次谐波,首先由Ducuing和Bloembergen[78]观察到。当时是将一个GaAs镜(或一个具有对称性为 $\bar{4}3m$ 的诸如Te或InSb的压电镜)浸在线性色散的液体中,并用一束红宝石激光去照射它。

反射二次谐波与反射基波光束的方向不同;反射二次谐波强度随最初的红宝石或铌玻璃激光束的入射角而变化,这已由Chang和Bloembergen[79]测量过。Bloembergen和Lee[80]观察了入射光束由浸在光密线性液体(1-溴代苯)中的非线性介质(NaClO₃或KH₂PO₄)全反射而产生的4860埃的内反射二次光谐波。入射光束是Q开关红宝石激光在H₂气中感生的受激斯托克斯光束。按照理论[17], [18],这个实验表现格外高的反射二次谐波强度,因为对全反射临界角的反射强度来讲,位相匹配是重要的。最近,Bloembergen等人,已对产生二次谐波中的全反射现象作了详细讨论[82]。

由非线性极化的一般理论[20, 22, 24]得出结论:在(10)式的电偶极子近似中,除了三次偶极子极化之外,在中心对称的物体中(那里电偶极子-偶极子项不存在),还必须考虑起着特别重要作用的其他多偶极子的贡献。对频率 2ω 的二次偶极子极化的电四极子近似由

$$P_i^{(2)}(2\omega, 2K) = \kappa_{ijk}^{(4)} E_j(\omega, K) \nabla_k E_l(\omega, K) \quad (15)$$

给出[20, 24]。K_{ijk}⁽⁴⁾被定义为四极子近似中的非线性偶极子极化系数,是一个4阶张量,它的元即使在具对称中心的介质中也是非零的。

同(15)式量级相同的贡献来源于电偶极子近似中

的二次电极子极化[20, 24]:

$$Q_{ij}^{(2)}(2\omega, 2k) = \kappa_{ijk}^{(2)} E_k(\omega, K) E_i(\omega, k) \quad (16)$$

在有对称中心的物体中, 由电四极子过程产生的二次谐波强度, 较之于不具对称中心的物体中由电偶极子机构(10)产生的辐射强度, 是相当微弱的。四极子极化(16)与偶极子极化(10)之比率的量级为 $Ka = 2\pi a/\lambda$, 具有代表系统特征的微观系统的线度(原子或分子的大小, 晶体点阵常数)。在光波范围内, 这个比率是 10^{-3} 量级, 同实验一致[67]。当论述产生二次谐波的过程时, 为使具有广泛的普遍性, 我们还必须考虑电磁波的磁场对介质作用引起的电极化和磁极化, 以及由电场感生的磁极化[20, 24], 在二级近似中, 由于电场和磁场的同时作用而产生的电偶极极子化为[83, 84]:

$$P_i^{(2)}(2\omega, 2k) = \eta_{ijk}^{(2)} E_j(\omega, k) H_k(\omega, K) \quad (17)$$

这里的磁—电极化系数的虚张量, 即使在各向同性物体的情况中, 也有非零的张量元[84]。那里, (17)式的极化所取的形式为[83]:

$$P^{(2)}(2\omega, 2K) = \eta^{(2)} E(\omega, K) \times H(\omega, K), \quad (17a)$$

Jha[83], 根据(15)到(17)式, 对于从金属表面产生二次谐波的问题进行了理论探讨。这个效应首先由Brown等人在使巨脉冲激光束从银镜表面反射时观察到。此后, 在实验中, 也曾研究了从其他金属(Ag, Au, Ga, Cu, Bi[86-89]), 各种半导体和碱金属盐(CaF₂, NaF, KCl, NaCl[90])反射的效应。从金属和半导体反射产生的二次谐波, 主要是由于束缚电子和自由电子二者产生的四极子型的非线性, 这些电子与带内和带间跃迁有关。最近, Wang[91]首先报导了对红宝石激光从几种液体—空气交界表面(例如H₂O, CS₂, C₆H₆)反射产生的二次谐波的测量。

2.4, 光混频

在非线性质中, 两列波的振动的混频过程(导致合频 $\omega_1 + \omega_2$, 或差频 $\omega_1 - \omega_2$)可由二次极化, (8)式, 来说明。从两台红宝石激光器来的单色光束的混频, 首先由Bass等人[92]所获得。这两台红宝石激光器中, 一台工作在液氮温度, 而另一台工作在室温。由其产生的差频波长约为1毫微米。这两光束被聚焦在一块TGS晶体表面上, 用高分辨率石英摄谱仪在其出射方向上进行观察。发现在感光板上有三根靠近的线, 靠右的线相当于冷激光器产生的二次谐波, 靠左的线相当于在室温工作的激光器产生的二次谐波, 而在中心的线则显现合频 $\omega_1 + \omega_2$ 。当晶体在它的居理温度(50℃)以上时, 这些过程都消失了, 在此范围内, 已知TGS是中心对称的。

Miller和Savage[93]作了一个重要的实验。其中, 将红宝石激光束同CaWO₄: Nd³⁺ (1.0582微米)的激光束, 在许多晶体(KDP, ADP, BaTiO₃)中进行混频。除了各光束的二次谐波外, 还观察到4189埃的合频光束。当两光束在时间上不重叠时, 只观察到未混频的信号; 当它们开始叠加时, 出现小量的混频信号; 最后, 当两光束准确重叠时, 观察到很大的混频信号。当出现速度匹配时, 产生二次谐波和混频的效率大大增加。此外, 在LiNbO₃中还观察到He—Ne气体激光器光波的六个合频信号, 它们涉及到四条线, 即波长1.153微米、1.161微米、1.198微米和1.177微米的线。

Bradley等人[95]报导了在ADP中观察到增益开关红宝石激光器单脉冲输出中的两个可调谐频率的合频。这就提供了可能直接同时比较三条线 $I(2\omega_1)$ 、 $I(2\omega_2)$ 和 $I(\omega_1 + \omega_2)$ 的转换效率和相对强度。已证明, 当两束基频 ω_1 和 ω_2 在时空上完全重叠时, 比值 $R = I(\omega_1 + \omega_2) / [I(2\omega_1)I(2\omega_2)]^{1/2}$ 接近4, 与非线性光学理论所预测的相同。

Zernike和Berman[96]报导了对石英晶体中混频过程产生的远红外辐射的第一次观测。它是由钹玻璃激光的两条近红外谱线1.059微米和1.073微米间的差频产生的。当可见激光在GaP晶体中同处于晶格共振(剩余射线)附近的五个红外激光频率混频时, Fausst和Henry[97]观察了合频和差频的产生。把红外辐射转换成可见的一种方法, 是将它同高度准直的红宝石激光辐射, 在LiNbO₃中混频, 这已由Midwinter所描述[98]。Faries等[99]观察了两个温度调频的红宝石激光束, 在LiNbO₃或石英中混频, 由差频得到的可调谐远红外辐射。而且, 也观察到在大块非线性介质中的非位相匹配的差频混频产生的远红外辐射[100, 101]。Van Tran和Patel[102]已证明, 在半导体中的磁等离子体效应, 可用在远红外中产生位相匹配的非线性相互作用。特别是由9.6微米和10.6微米的CO₂激光跃迁在n-InSb中混频, 在100微米范围内产生差频。稍早一些时候, Chang等人[103]用CO₂气体激光线, 在为位相匹配相互作用而设计的填充GaAs波导中混频, 产生了波长为毫米的差频波。

最近, Patel和Van Tran[104]报导了, 由9.6微米和10.6微米的圆偏振红外辐射间的位相匹配的差频混频, 在100微米处产生圆偏振远红外辐射的首次观察结果。Brown[105]提出了从金属和半导体的反射观察远红外差频的产生。Sodha等[106]考虑了在均匀等离子体中产生波的组合频率。

Giordmaine[23]把注意力放在不会出现光倍频的旋光性液体中产生光波混频的可能性上。实验上已

由Pentzepis等人[107]做了,他们在阿拉伯糖水溶液和其他旋光性溶液中观察到产生相干光合频。在他们的实验中,红宝石激光束和它在KDP晶体中3471.5埃处产生的二次谐波,在液体中交叉时产生了2314埃的准直合频发射。Cohan和Hameka[108]提出了在液体和气体中共振情况下产生合频的理论和实验,在该实验中仅有一束入射光束源于一个激光源,而其他的则是普通的可变频率的偏振单色光[109]。的确,这是一种相干光同非相干光在液体中混频的情况;用红宝石激光同汞弧灯光混频,已经在KDP晶体中实现。Bey和Rabin[110]对光活性物体中圆偏振波的合作,进行了一般的理论分析[110]。

3. 三次光学过程

入射在一块介质上的频率为 ω_1 、 ω_2 、 ω_3 和波矢为 K_1 、 K_2 、 K_3 的三列波产生了三次极化。根据(4)式,在偶极近似中,它具有下面的形式:

$$P_i^{(3)}(\omega_4, K_4) = X_{ijk1}^{\omega_4} E_j(\omega_1, K_1) E_k(\omega_2, K_2) E_l(\omega_3, K_3), \quad (18)$$

这里,按照同步条件(5)和(6),对四波相互作用而言我们有[111]

$$\omega_4 = \omega_1 + \omega_2 + \omega_3 \quad (5c)$$

$$K_4 = K_1 + K_2 + K_3 + \Delta K \quad (6c)$$

对于三次非线性极化率张量,我们有下面的时空互换对称关系[3, 16]:

$$\begin{aligned} X_{ijk1}(-\omega_4, \omega_1, \omega_2, \omega_3) &= X_{jik1}(\omega_1, \omega_2, \omega_3, -\omega_4) \\ &= X_{ijlk}(\omega_3, -\omega_4, \omega_1, \omega_2) \end{aligned} \quad (19)$$

张量 X_{ijk1} , 即使在具有对称中心的各向同性物体中,也在液体和气体中,也具有非零的元。所有晶系的非零的张量元已列表[4, 111]。在光色散不存在或小到可忽略的物体中,张量 X_{ijk1} 可作为完全对称处理。在各向同性物体中, X_{ijk1} 有21个非零的元,仅有3个是相互独立的。在一般情况中,我们可写成[112]

$$X_{ijk1} = X_{xyxy} \delta_{ij} \delta_{kl} + X_{xyxy} \delta_{ik} \delta_{jl} + X_{yxyx} \delta_{il} \delta_{kj} \quad (20)$$

这里,使用了关系[4]:

$$X_{xxxx} = X_{yyyy} = X_{zzzz} + X_{xyxy} + X_{yxyx} + X_{xxyy} \delta_{ij}$$

表示Kronecker单位对称张量。

3.1, 三次谐波的产生

在各向同性的非旋光性物体中,在没有频率和空

间色散及磁旋光性时,注意到(19)和(20),在 3ω 的三次极化由下式给出[39]:

$$P_i^{(3)}(3\omega, r) = 3X_{xyxy}(-3\omega, \omega, \omega, \omega) E_j(\omega, K) E_k(\omega, K) E_l(\omega, K) \quad (21)$$

(我们现在有 $X_{xyxy} = X_{yxxy} = X_{yxyx}$),

(当介质是完全透明时)由这个极化引起的三次谐波强度为

$$I(3\omega, r) = (X^{3\omega})^2 \left\{ \frac{\sin \frac{1}{2} \Delta K r}{\frac{1}{2} \Delta K} \right\}^2 I^3 \quad (22)$$

当满足位相匹配条件,

$$\Delta K = \left(\frac{3\omega}{C} \right) (n_{3\omega} - n_\omega) = 0$$

时,显然效率最高。

使用红宝石激光获得在2314埃内紫外三次谐波的第一次尝试是由Terhune等人在氟化钙中作的[113],随后在立方晶体(LiF, KCl, CaF等)和液体[39, 114]中也作了。Bey等人提供了最早的实验,证明了把反常色散引入通常不可匹配的介质时可获得位相匹配。他们把染料分子引入液态介质(如,玫瑰红染料溶于六氟丙酮倍半水合物),获得了致激光谱线在3530埃的位相匹配的三次谐波。这些实验由Chang和Galbraith[116]扩展到不同折射率失配的其他溶剂,以及其他染料,亚甲兰。Bey等人[117]报道了对产生三次谐波的很有趣的研究,证明了一线偏振激光束产生了三次谐波信号,而按照理论圆偏振光束则不会这样。这个实验能够导致在决定激光偏振想时、在调制它和测量锁模激光器产生的超短脉冲时的种种应用。

Ward和New[118]使用聚焦的红宝石激光束在气体(He, Ne, Ar等)中观察到在2314埃的三次谐波。

Goldberg和Shnur[119]研究了在液晶中产生的谐波,其目的在于验证早期关于在这些物体中产生谐波的研究[120],特别是在氰(CN)以及另外的胆甾醇和向列液晶中的研究。固相CN显示高的二次谐波强度同石英晶体粉末同数量级。加热时,在从固相转变到胆甾醇相的79℃附近,二次谐波强度陡降四个量级之多。从各向同性液相通过碟状液晶的中间相缓慢冷却的逆过程中,仅在再结晶成固体的点上观察到清楚的二次谐波信号。在所有相中,三次谐波是明显的,在加热和冷却两种情况下,它在固相中的强度比在液相中的强度高100倍。在其他液晶中也得到类似的结果;在必须看作中心对称的液晶相中,任何情况下它都没有表现出二次谐波。上面提到的研究作了在产生谐波过程中分子相互关系的明显的表演。这种分子相互关系在各向同性介质内多次谐波光散射和光的双折