

强 光 光 学 效 应 (I)

刘 颂 豪 赫 光 生

(中国科学院上海光学精密机械研究所)

一、引 言

现在大家都已知道,本世纪六十年代激光技术的出现与发展,是现代科学技术史上的一次重大事件,它标志着人们对光频段强相干电磁辐射的产生手段、控制能力及其与物质相互作用的认识水平,已上升到一个新的更高阶段。

由于激光的产生是基于粒子数分布反转体系的受激发射作用,而普通光的产生是基于一般光源发光体系中的自发辐射行为,因此就决定了两类光辐射在本质上的区别,并且也充分反映在描述两类光辐射的有关物理参量的巨大的数值差异上。一般说来,激光具有很好的方向性、单色性和相干性;从辐射光度学的角度来看,激光具有很高的定向亮度和单色定向亮度;用量子统计学的术语来描述,激光具有高光子简并度的特点;从电磁波谱学的观点来看,激光又具有高单色电磁场强和可调谐等特点。其中最本质和最具有综合性的特征参量,是光子简并度,它定义为单个电磁场波型(模式)内所含的平均光子数。包括太阳在内的任何一种普通光源在可见光谱区的发光光子简并度,均不大于 10^{-2} — 10^{-3} 数量级;而一般激光器输出激光的光子简并度可达 10^8 — 10^{13} 量级,采用调Q技术的特种大功率激光器的输出光子简并度甚至可高达 10^{14} — 10^{17} 量级。激光的高光子简并度,意味着激光辐射的能量可在时间、空间和频率三个范围内的高度集中;从这种意义上来说,或者从光对物质作用的潜力上来说,激光与普

通光的区别,可以拟为热核爆炸与普通炸药爆炸能力之间的区别。因此,我们可以称普通光源(包括太阳这类自然光源)发出的光辐射为弱光辐射,它们与物质之间的相互作用称为弱光作用;而把激光辐射称为强光辐射,它们与物质间的相互作用称为强光作用。

就有关光与物质相互作用并伴随着能量与动量交换过程的这一领域而言,激光技术出现后,人们所发现的比较重要的新现象与新效应的总和,大大超过了过去长时间里人们所发现的普通(弱光)光学现象和效应的总数。可以把人们所发现的这些新现象与新效应,统称为强光光学效应或非线性光学效应。取后一称呼的主要理由是,对于较多的新效应来说,可用与人射激光发生作用的光学介质内的非线性感应电极化这一物理机制来加以解释。此时介质的电极化强度矢量可表示为如下的一般形式:

$$P = \chi^{(1)}E + \chi^{(2)}EE + \chi^{(3)}EEE + \dots, \quad (1)$$

式中 E 为入射光电场强度矢量, $\chi^{(1)}$, $\chi^{(2)}$, $\chi^{(3)}$ 等分别称为一次(线性)、二次(非线性)、三次(非线性)电极化系数,一般情况下,均为张量形式的系数。理论上可证明,公式(1)中的后面一项与前面相邻一项之比在量级大小上约为 E/E_0 , 这里 E_0 为电场强度的原子单位。对于普通的弱光入射而言,光场的 E 值远远小于 E_0 , 故(1)式中除第一项外,其余各项均可忽略,这就是激光技术出现前的普通线性电极化效应;此情况下,不同频率的单色光场同时入射到任何介质中时,它们彼此之间不会发生能量与动量的交换,也不会新的频率处产生相干光辐射。对于强激光入射来说,情况则起了根本变

化;此时由于光场的 E 值已足够大,致使(1)式中的比较低次的各非线性项的贡献不能再被忽略,因此出现非线性电极化效应,从而导致一系列所谓非线性光学效应的出现。例如,单色强激光入射到特定的介质中可产生谐波辐射,不同频率的单色激光同时入射,可在新的特定组合频率处产生相干光辐射等。但这里值得指出的是,并非所有新发现的效应都能用非线性电极化的理论来解释,因此把所有这些新效应,统称为强光学效应,似更为恰当。

研究各种强光学效应的产生原因和过程规律性,并探索它们在当前或今后科学技术发展中的各种可能应用,具有重要的科学意义和实用价值,因此引起人们极大的兴趣和重视,从而促使了一门新兴的分支学科——非线性光学或强光学出现与发展。开展强光学效应研究的最显著的成果之一,是向人们提供了除激光器以外,产生强相干光辐射和扩展波段的新的有效手段;成果之二是大大加深了人们对光与物质相互作用规律性的认识,促进了基础理论的发展;成果之三是为人们更有效地认识和改造客观世界,提供了一批新方法与新技术。

本文拟就一些最主要的强光学效应,分别作简短的评述性介绍,着重在这些效应的产生原理、研究成果以及它们的应用价值。

二、非线性光学混频效应

非线性光学混频效应,是指一种或多种单色强相干光波场入射到特定的光学介质中,通过介质内部发生的感应非线性电极化过程,而在一种或多种新的频率处产生单色相干光发射^[1]。一般情况下,入射光波并不直接与介质发生能量与动量交换,而是在介质内部不同频率的单色光波场之间发生相互耦合以及能量与动量的相互交换;此时过程有效产生的条件,是能量守恒与动量守恒要求应得到满足,前一要求决定了相互耦合作用光波间的频率关系,后一要求决定了相互作用光波之间的波矢关系或

相位匹配关系。按照过程产生所基于的公式(1)中,非线性电极化贡献项之阶次的不同,可区分为二次非线性混频(三波混频)效应、三次非线性混频(四波混频)效应以及更高次的非线性混频效应等几大类。光学混频效应的形式包括了光学倍频(谐波)、和频、差频与参量作用等几种类型。混频过程的主要特点是,参与相互耦合作用的所有不同频率的单色光波场,是分别与它们在介质中通过非线性电极化效应所激励起的相应频率的非线性电极化波源一一对应的。

1. 二次非线性混频(三波混频)效应

理论分析表明,在电偶极近似下,二次非线性过程只能发生在数目有限的不具中心对称的各向异性光学晶体中。此时由强光入射而引起的二次非线性电极化强度分量按(1)式可写为

$$P^{(2)} = \chi^{(2)}EE, \quad (2)$$

式中 E 为入射到晶体内的总光波场强, $\chi^{(2)}$ 为晶体的二次非线性电极化系数,当 E 所包含的电磁场单色分量给定时, $P^{(2)}$ 中就包含了新的单色频率分量,从而有可能成为新的单色电磁波场的辐射源。为使混频过程有效地产生,满足由光子动量守恒所要求的相位匹配条件是至为重要的,而在通常情况下,相位匹配条件表现为折射率匹配条件;由于晶体折射率的色散效应,而使相位匹配条件一般不能自动满足,为此必须利用其他的效应(如折射率的双折射效应或温度效应)来加以补偿。属于二次非线性混频过程的主要效应包括以下几种:

① 光学二次谐波——这是一种非常成熟的相干光频率上转换技术。过程产生的最简单的物理图象是两个单频(ω)入射光子的湮灭和一个倍频(2ω)光子的同时产生,所满足的能量与动量守恒关系分别为 $\omega' = \omega + \omega = 2\omega$ 和 $k' = k + k = 2k$, 这里 k 为基波波矢而 k' 为谐波波矢。在共线作用情况下,相位匹配要求 $n(2\omega) = n(\omega)$, 这里 $n(2\omega)$ 为晶体在二次谐波频率处的折射率, $n(\omega)$ 为入射基波频率处的折射率。对于可见和近红外基波入射而言,常采用的晶体介质为 KDP, KD*P, ADP, LiNbO₃,

KNbO₃, LiIO₃, CDA, RDA, RDP, 尿素等晶体, 二次谐波的产生效率可高达 30—50% 以上, 对于中红外基波入射来说, 常采用 Ag₃AsS₃, CdGeAs₂, Te, CdSe 等半导体晶体, 转换效率可达 5—15% 左右^[2].

② 光学和频与差频——这是由两种不同频率 (ω_1 和 ω_2) 的单色光同时入射而产生的两种二次非线性混频过程. 当产生的新频率为 $\omega' = \omega_1 + \omega_2$ 时对应于光学和频过程, 匹配条件为 $k' = k_1 + k_2$; 当产生的新频率为 $\omega' = \omega_1 - \omega_2$ 时, 对应于光学差频过程, 匹配条件为 $k' = k_1 - k_2$. 光学和频是相干光频率上转换的有效方法之一, 而光学差频则是频率下转换的一种方法^[3]. 所使用的介质大致与二次谐波所使用的介质相同. 由于晶体有限透明波段的限制, 使光学和频的波长只能达到近紫外区, 而差频的波长在原则上可延伸到远红外以至亚毫米波段. 七十年代以来, 各种激光可调谐技术的发展, 为产生可调谐光学和频或差频输出提供了基础.

③ 光学参量放大与振荡——从物理上来看, 这种效应可以看成是光学和频效应的一种逆过程, 亦即一束频率较高的 (ω_p) 强相干泵浦光子入射到非线性晶体中, 产生两束频率较低的 (分别为 ω_1 和 ω_2) 相干光束, 这意味着一个人射泵浦光子的湮灭和两个较低频率的光子的同时产生, 过程满足的条件分别为 $\omega_p = \omega_1 + \omega_2$ 以及 $k_p = k_1 + k_2$. 利用非线性晶体折射率相对于温度、角度、外场以及偏振状态等因素的依赖关系, 可在满足相位匹配的前提下获得可连续调谐的频率下转换的相干放大或相干振荡输出. 采用类似于二次谐波用的非线性晶体, 作为参量放大器使用时, 连续增益可达 1 分贝量级, 脉冲增益可达几十分贝量级, 能量转换效率可达 20%^[4]; 作为参量振荡器使用时, 由泵浦光向新频率处相干光输出的能量(或功率)转换效率可达 20—50% 左右.

2. 三次非线性混频(四波混频)效应

理论分析可表明, 三次非线性电极化效应可发生在任何一类光学介质中(包括具中心对

称的晶体以及各向同性介质), 此时三次非线性电极化强度矢量根据(1)式可写为

$$P^{(3)} = \chi^{(3)}EEE, \quad (3)$$

式中 $\chi^{(3)}$ 为介质的三次非线性电极化系数张量^[5], E 为介质内的总光波场强, 一般情况下它可包含三种单色入射光频率分量 ω_1 , ω_2 和 ω_3 , 从而可在 $P^{(3)}$ 中产生新的频率分别为 $\omega' = \omega_1 \pm \omega_2 \pm \omega_3$ 等单色分量, 并进而可在这些新的组合频率处产生相干光输出. 基于上述原理, 可实现多种形式的相干光频率上转换或下转换; 另一方面, 也可实现一系列专门的新方法和新技术, 如四波混频光谱术、光学相位共轭术以及光学双稳态技术等. 对于能比较有效地产生四波混频作用的介质的主要要求是: 首先, 介质对参与相互作用的各单色光波具有一定的光学透过率; 其次, 要求介质具有适当的折射率特性以满足相位匹配条件; 最后, 当适当选择入射光频率和介质本身的能级结构, 使得其中两种作用光子之能量和或能量差与介质特定能级间隔发生共振或近共振时, 可使有关的四波混频过程得到明显的增强. 由于人们愈来愈期望在真空紫外或更短的波长区获得强相干光辐射, 因此用四波混频方法实现相干光频率上转换, 自然受到重视. 下面介绍两种主要的四波混频频率上转换技术.

① 光学三次谐波——在单一频率的强相干光入射作用下, 通过三次非线性电极化效应可产生三次谐波辐射, 这相当于三个基频入射光子的湮灭和一个三倍频光子的同时产生. 过程应满足的频率条件为 $\omega' = \omega + \omega + \omega = 3\omega$; 而相位匹配条件为 $n(3\omega) = n(\omega)$, 这里 $n(\omega)$ 为介质对基波的折射率, $n(3\omega)$ 为对三次谐波的折射率, 通常采用在工作介质中加入具有相反折射率色散变化特性的附加介质的方法, 来实现相位匹配. 用来产生真空紫外区三次谐波辐射的工作介质主要有两大类: 一类是气压约为几托到几十托的金属原子蒸汽如 Rb, Sr, Mg, Ca, Na, Cs, Li 等系统, 由入射基波向三次谐波的能量转换效率可达 1—10% 左右^[6]; 另一类是气压为几十到几百托的惰性气体如

Kr, Xe, Ar, He, Ne 等系统, 转换效率一般小于 10^{-3} 量级^[7].

② 四波和频——当三种不同频率的单色光同时入射时, 通过介质的三次非线性电极化效应可产生和频光输出, 此时应分别满足 $\omega' = \omega_1 + \omega_2 + \omega_3$ 和 $n(\omega') \cdot \omega' = n(\omega_1) \cdot \omega_1 + n(\omega_2) \cdot \omega_2 + n(\omega_3) \cdot \omega_3$, 这里 $n(\omega_1)$ 为 ω_1 频率处的介质折射率. 为了简便, 通常采用两种不同频率的光同时入射, 例如其中 ω_1 为较强的人射激光, 而 ω_2 为较弱的可调谐激光, 则相应的可调谐和频输出光的频率为 $\omega' = 2\omega_1 + \omega_2$. 四波和频所采用的介质与三次谐波的情况大致相同, 一般也是采用掺入辅助气体的方法实现相位匹配, 或者利用双光子共振作用来增强四波和频输出^[8].

三、受激散射效应

在激光出现以前, 一般纯净的均匀光学介质的光散射效应(如普通的瑞利散射、拉曼散射和布里渊散射等)是十分微弱和比较难以观察的. 但在激光技术出现后, 以单色的强激光入射到特定的纯净光学介质中, 不但使上述几种光散射现象很容易观测, 而且在一定的条件下, 可以使这些散射现象呈现出一些崭新的特征, 从而可产生很强的定向相干散射光输出, 这就是所谓受激散射效应. 开展受激散射效应的研究, 不但加深了人们对光与物质相互作用规律性的认识, 也提供了用来产生变频相干辐射的新手段, 此外也有助于人们去更好地了解有关物质结构和光谱跃迁特性等方面的信息.

1. 受激瑞利散射

如所周知, 纯净介质中由分子密度起伏引起的普通瑞利散射是指向空间各方向的, 并且相对于入射光而言不发生特征性频移. 在六十年代后半期, 人们在研究强激光入射到一些有机透明液体介质中引起的散射效应过程中, 发现了两种新型的效应, 它们可分别称为受激瑞利翼散射以及受激热瑞利散射; 这两种新效应与普通瑞利散射的区别, 一方面表现在散射

光具有定向性和增益, 另一方面则表现出具有特征性的频移分布. 研究表明, 受激瑞利翼散射发生在一些由各向异性分子组成的有机液体中^[9], 在强激光作用下, 液体分子呈现出感应再取向趋势, 从而引起介质感应电极化特性的变化, 并导致散射光的特征频移分布. 受激热瑞利散射, 发生在某些对入射激光具有轻微吸收作用的液体或气体之中, 被散射介质吸收的一部分光能转变为热能, 从而引起分子密度或感应电极化特性的动态变化, 因此将导致具有特征性频移的受激散射^[10].

2. 受激拉曼散射

现在大家都已知道, 激光工作物质向给定单个光场波型(模式)内的受激辐射几率与自发辐射几率之比, 恰恰等于该波型内的光子简并度; 由于激光的光子简并度远远大于 1, 因此可以看出激光完全是受激辐射贡献的结果. 受激拉曼散射与普通拉曼散射之间的区别, 也非常相似于激光与普通光之间的区别. 量子电动力学理论证明, 散射介质内单个散射中心(分子或原子等)单位时间内向光场特定波型内发射出一个拉曼散射光子的总几率可写为^[11]

$$W(\nu) \propto (1 + N_{\nu_0}) \cdot N_{\nu}, \quad (4)$$

式中 N_{ν_0} 表示频率为 ν_0 的人射光的光子简并度, N_{ν} 表示频率为 $\nu = \nu_0 \pm \Delta\nu$ 的拉曼散射光的光子简并度, $\Delta\nu$ 为散射光的频移量, 其大小由散射中心在散射过程的起始和终了时, 所处境能的间隔而决定. 由(4)式可看出, 拉曼散射几率由两项因子的贡献所组成: 第一项与 N_{ν_0} 成正比, 对应普通拉曼散射; 第二项与 $N_{\nu_0} \cdot N_{\nu}$ 成正比, 对应受激拉曼散射情况. 对于普通弱光入射, 由于光子简并度 $N_{\nu_0} \ll 1$, 必然有 $N_{\nu} \ll 1$, 故上述第二项贡献完全可忽略. 对于强激光入射而言, 由于 $N_{\nu_0} \gg 1$, 因而有可能使 $N_{\nu} \gg 1$, 则上述第一项贡献可忽略, 而受激散射几率大为增加, 从而可使散射光获得增益放大作用, 当这种作用足以抵消通过介质时的各种损耗影响后, 就可在某些特定方向(通常为前向或后向)上形成强相干光输出.

按照散射中心在散射过程的起始和终了阶

段所处能级性质的不同,可将受激拉曼散射效应进一步区分为如下几种:

① 振-转受激拉曼散射——这是发生在分子介质内的一种受激散射,散射前后分子在其不同的振-转能级上发生跃迁.常用的散射介质可分为三类:一是以硝基苯、苯、CS₂等为代表的几十种有机液体;二是以金刚石、方解石、玻璃等为代表的固体;三是一些几十到几百大气压的高压气体.散射光频移一般为10²—10³厘米⁻¹量级,由入射光向受激散射光的能量(或功率)转换效率可达30—50%以上.

② 电子受激拉曼散射——这是发生在原子介质内的一种受激散射,散射前后原子在其不同电子能级间发生跃迁.目前研究较多的主要是Cs, K, Ba, Tl等金属原子蒸汽系统.散射光频移较大,约为10³—10⁴厘米⁻¹,由入射光向受激散射光的能量转换效率可达10%左右^[12],量子转换效率可达40—50%.

③ 纯转动受激拉曼散射——这是最近几年才引起人们注意的一种受激散射形式,其特点是伴随着散射分子在其不同纯转动能级之间的跃迁,故散射光的频移量较小,一般约小于10²厘米⁻¹量级.以目前所研究的低温仲氢气体介质为例,用10.6微米的脉冲激光入射,通过仲氢分子纯转动跃迁可获16微米的受激散射输出,能量转换效率可达55%,量子效率可达85%^[13].利用这种效应,还可研究H₂, D₂, N₂以及空气等介质的纯转动跃迁的散射光谱特性^[14].

④ 自旋反转受激拉曼散射——这是发生在某些半导体介质内的受激散射效应^[15].在施加外部静磁场的情况下,半导体介质导带中电子的朗道能级按两种相反的自旋取向而分裂为两个子能级;在散射过程的前后,伴随着导带电子在上述两子能级间的跃迁,受激散射光频移由这两能级间隔决定并可写为

$$\Delta\nu = |g^*| \cdot \mu_B \cdot B/\hbar, \quad (5)$$

式中 g^* 为电子的有效回磁比, μ_B 为玻尔磁子, B 为外加磁场强度, \hbar 为普朗克常数.这种受激散射效应的最大优点,是通过改变磁场强度

B ,可实现受激散射输出光的连续调谐.最典型的工作物质为n型InSb半导体单晶,工作温度10—30K,磁场强度10—100千高斯,频移量0—200厘米⁻¹左右,功率转换效率可达30—50%左右^[16].

3. 受激布里渊散射

普通的布里渊散射发现于本世纪二十年代末,它是由连续介质内的自发弹性运动(声振动)所导致的密度起伏所引起的光散射现象.由于一般情况下介质内的自发声场运动十分微弱,加上又缺少强的单色入射光源,因此使这种散射效应比较难以观测.激光出现后,不但使普通的布里渊散射很易于观察到,而且在一定条件下可产生受激布里渊散射;后一效应,可看成是入射激光与其在透明光学介质内通过电致伸缩机制所激励起的强超声波场之间的相互作用所引起的^[17].按照入射光子与介质内感应产生的声子之间相互作用的能量守恒与动量守恒要求,可求出散射光相对于入射光的频移量为

$$\Delta\nu = \nu_s = 2\nu_0 \cdot \frac{n\nu_s}{c} \cdot \sin\frac{\theta}{2}, \quad (6)$$

式中 ν_0 为入射光频率, n 为介质折射率, c 为光速, θ 为所产生的受激散射光相对于入射光的夹角, ν_s 为介质内感应超声波场的速度, ν_s 为感应超声波场的频率.由上式可见,通过改变散射角 θ ,可对受激布里渊散射光的频率实现精密调谐.

在实验上,已在数十种以上的透明光学介质(包括固体、液体、高压气体、等离子体)中观察到受激布里渊散射效应.所能获得的最大频移(通过反向散射)约为10⁻²—1厘米⁻¹量级;在介质内感应产生的声场频率范围约为10⁹—10¹¹赫,处于特超声波段;由入射光向受激散射光的转换效率,可达10—30%左右.

开展受激布里渊散射的研究,一方面加深了人们对强光场与强超声波场之间相互作用过程的了解,提供了实现超精密相干光可调谐移频器的有效手段;另一方面,在现代声学领域内,开拓了特超声这一声波新波段,并且提供了一

(下转第299页)