

# 半导体激光器在光谱研究中的应用

张培林

(中国科学院量子光学联合开放实验室, 上海 201800; 清华大学物理系, 北京 100084)

近年来半导体激光器的发展引人注目, 已由红外波段推向可见光区, 可靠性和输出功率提高而价格下降, 在光谱研究方面的应用也日益广泛. 文章介绍了半导体激光器的现状, 频率稳定、压缩线宽和调谐波长的方法, 以及半导体激光器在吸收光谱、非线性光谱、原子的冷却和光泵浦原子钟等方面的应用.

## Abstract

Recently semiconductor diode lasers have been steadily improving in wavelength coverage, reliability and output power, while steadily decreasing in cost. This progress has made it possible to use semiconductor lasers for spectroscopy in a variety of areas. An Overview is given of the present status of semiconductor lasers, methods for their frequency stabilization, linewidth reduction and wavelength tuning, and their applications in absorption spectroscopy, nonlinear spectroscopy, atom cooling and optical pumping of atomic clocks.

## 一、半导体激光器现状

迄今为止用于光谱研究的传统相干光源是染料激光器, 价格比较昂贵, 调整也较费时. 近年来半导体激光器或称二极管激光器的发展引人注目. 它已由红外波段推向可见光区, 在可靠性和输出功率提高的同时, 价格也逐步下降. 目前已有可能用不多的钱完成一台可调谐、线宽很窄、输出毫瓦级以上的半导体激光器, 已可用于光谱研究, 而且具有体积小、不需要交流电源和冷却水等优点. 1991年世界半导体激光器的销售已达2000万只以上, 远远超过其他所有激光器的总和, 预计今后还会继续增长. 在半导体激光可用的波长范围内, 已有取代传统的中低功率激光器和染料激光器的趋势.

半导体激光器是用直接带隙半导体制成的异质结(或量子阱)器件. 靠电流注入电子空穴复合产生受激辐射. 波长范围决定于所用材料的能带间隙<sup>[1,2]</sup>. 最常见的是 AlGaAs 双异质结激光器, 其输出波长750—890nm, 广泛用于激光打印、光盘, 以及其他商用和家用电子器件

中. 波长较长的1.3 $\mu\text{m}$ 和1.5 $\mu\text{m}$ 激光器是 In-GaAsP 四元系半导体, 主要是为光纤通信需要而发展起来的. 670—690nm 使用的是 In-GaAlP 材料的异质结和量子阱激光器, 可用于需要可见光的许多光电子装置中. 以上各种激光器已有商品, 连续输出功率可达10—100mW. 最近报道了使用 GaInP/AlGaP 多量子阱器件可制出630nm 激光器, 使用 ZnSe/CdZnSe 量子阱器件可得到490nm 的蓝绿激光. 现在半导体激光器的性能比前几年有很大提高, 但是新发展出的可见光激光器尚不如750—890nm 的激光器成熟, 为了能够用于计量和高分辨率光谱, 尚需要做多方面的工作. 半导体激光器的腔长只有几百微米, 由于腔的结构, 输出光束发散角大, 象散也大. 例如, 670nm 激光器在垂直和水平方向的发散角分别为40°和10°, 即使同一批产品中, 该参数个体差异也不小, 光斑不对称. 另外, 可见光激光器经常是多纵模工作, 即使厂家提供的单模激光器也不是纯粹的单模, 常常伴有其他纵模出现, 有的只是在合适的工作电流下才是单模.

## 二、光谱应用对半导体激光器的要求

光谱和计量应用要求半导体激光器的频率稳定,线宽窄.光谱应用还要求波长可以调谐<sup>[3,4]</sup>,现分述如下.

### 1. 中心频率的稳定

有些高分辨率光谱和干涉计量应用,仅仅需要控制激光器的中心频率.这就要求精心控制激光二极管的热环境、光环境(光反馈)和注入电流.下面分别讨论半导体激光器对环境参数的敏感程度和控制频率起伏的方法.

半导体激光器的增益曲线和腔的光学长度均随温度改变.例如常用的 GaAlAs 激光器,增益曲线随温度的变化为  $-140\text{GHz/K}$ ,而半导体激光腔谐振频率的变化为  $-35\text{GHz/K}$ .这导致温度每变化  $1^\circ\text{C}$  激光器就会大约跳模一次,模间距约  $0.3\text{nm}$ .在二次跳模之间,激光频率按  $35\text{GHz/K}$  向红端平滑可调.这意味着对温度控制的要求很严格.如要使激光频率稳定到  $1\text{MHz}$ ,结温必须保持在  $30\mu\text{K}$  以内.不甚复杂的单级温度控制仪已可达到  $0.001\text{K}$  的稳定度,但如要求稳定度更高,则需要多级控温.一般的温度控制是靠半导体致冷器件来实现.其优点是响应速度快,体积不大,电流反向时可以实现致冷到加热的转变.原理是使用热敏元件测出激光二极管温度的变化,经过比较电路,转变成电误差信号,经过放大和自动控制电路改变致冷器的电流,从而使温度回到初始给定值.温度控制电路要求使用低温度系数元件,其中比较电路一级往往需要放在一个温度已控制好的盒子内.

半导体激光器的输出频率随注入电流改变约为  $2\text{GHz/mA}$ .因此  $0.5\mu\text{A}$  的电流稳定度才能对应  $1\text{MHz}$  的频率稳定度.电流控制比温度控制要容易些.

即使温度和电流都已控制,如果有部分激光又散射回到激光器,仍会造成半导体激光器频率的起伏,甚至还会引发跳模.由于半导体激光腔精细常数低,即使激光输出  $0.1\%$  以下的光物理

反馈,也会引起  $10\text{MHz}$  以上的频率浮动.再者支架受声音影响引起振动,也能导致激光器频率的声频起伏.如果反射光无法消除,但应用上允许使用圆偏振光,则可用偏振器和四分之一波片来消除光反馈.如果不能使用圆偏振光或者反射时改变了光的偏振,那就需用较为昂贵的法拉第偏转器.

为了更精确地稳定激光频率,有时可将激光频率锁定于原子、分子的特定谱线,或是 F-P 标准具的透过峰.这种锁定频率的激光器,其频率可以达到很高的稳定度,在精密测量和光通信上有应用.

### 2. 线宽压缩

表1 激光器的光谱特性

激光器	线宽(MHz)	温度漂移(MHz/K)
He-Ne	0.05	1000
稳定的 He-Ne	0.05	1
半导体泵 YAG	$<10^{-5}$	2000
钛蓝宝石	$<10^{-3}$	500
AlGaAs 半导体	10—50	35,000
外腔半导体	0.01—0.2	500
膜外腔半导体	0.1—0.5	500

大多数激光器的线宽是 Schawlow Townes 线宽.半导体激光器由于载流子涨落引起增益介质复折射率变化,其线宽是 Schawlow-Townes 线宽的  $(1+\alpha^2)$  倍, $\alpha$  是线宽增大因子.各类激光器的线宽比较见表1.由表1可知,即使做到完全控制环境,一个自由运行的 AlGaAs 激光器的线宽为  $10\text{—}50\text{MHz}$ .  $50\text{MHz}$  相应的相干长度等于  $6\text{m}$ ,已不能满足计量和高分辨光谱的要求.因此某种形式的线宽压缩势在必行.可以使用电子学方法进行线宽压缩,但这要求伺服系统的带宽大于自由运行激光器的线宽,电子线路比较复杂.另一类方法是使用光反馈.最简单的反馈元件是平面反射镜.利用反射镜的光反馈可使多模半导体激光器实现单模振荡并压缩线宽.此时,从激光二极管解理面上的弱反射被外反射所增强或替代.外反馈可强 ( $>10\%$ ) 可弱 ( $<1\%$ ),可以是色散的或非色散

的. 利用高精细系数的 F-P 腔返回的弱色散光反馈<sup>[5]</sup>, 能将 AlGaAs 激光器线宽压缩到 10MHz 以下. 采用此法可将线宽压缩, 但不明显改变激光波长. InGaAlP 可见光激光器线宽可高达 50—300MHz, 压缩后的线宽要比 Al-GaAs 器件差.

### 3. 波长调谐

强色散反馈在压缩线宽的同时可使激光器在大范围内调谐波长, 比单用电流或温度调谐范围要宽. 典型的办法是将激光二极管两个端面分别镀增透膜, 然后放入 Littrow 装置的衍射光栅, 在激光二极管的另一侧放置反射镜, 组成外腔半导体激光器. 旋转光栅使所需波长的光反射回激光器, 激光器就振荡于最接近于所选波长的一个外腔共振模. 由于包括光栅的外腔精细系数低, 线宽要比上述自 F-P 腔反馈法要宽. 典型外腔半导体激光器的调谐范围为几十纳米, 线宽可从 200KHz 降至 10KHz, 而可调制频率达 1GHz. 由于这种外腔激光器体积小 (约 1000cm<sup>3</sup>) 易于控温, 频率稳定度可达亚兆赫. 对于激光二极管可使用的波长, 上述激光器比染料激光器或钛蓝宝石激光器性能优越而价格较低.

高功率激光二极管如 SHAPP LT024 或 HITACHI HL8314 等型号, 出厂时已在一个端面上镀高反膜而另一端面镀增透膜, 后者反射率约 7%. 此种激光二极管不需改造就可外加光栅形成外腔激光器. 转动光栅可在大范围内

实现不连续的调谐, 利用压电陶瓷可使激光波长在一个小范围 (~50GHz) 内连续调谐, 然后跳到 150GHz 以外的另一个二极管腔模. 典型线宽是 100—500KHz, 这时激光器是一个长腔的一小部分, 对电流和额外的光反馈的敏感程度要降低五倍或更多. 但腔外腔对各元件的机械稳定性要求高. 上述腔外腔激光器中光栅是 Littrow 装置, 使用 Littman 装置作光栅的腔外腔半导体激光器也已有成功的报道<sup>[6]</sup>. 当 Littman 装置光栅工作在掠入射时, 衍射光经反射镜原路返回光栅和激光二极管. 转动反射镜可以调谐波长. 这种方法的优点是对电流和光反馈的敏感程度更低, 但衍射光栅的效率要求高.

## 三、半导体激光器用于光谱研究

半导体激光器是 1962 年发明的. 1968 年 Bölger 和 Diels 第一次使用半导体激光器于原子物理实验<sup>[7]</sup>. 但由于激光器性能存在问题, 研究进展不快. 80 年代, 随着双异质结半导体激光器实现了室温连续工作, 可用波段不断拓宽, 线宽和调谐性能逐步提高, 半导体激光器应用于光谱研究工作才迅速开展. 现分四个方面综述如下.

### 1. 吸收光谱

在 0.7—1.6 $\mu\text{m}$  波长范围内对有机分子蒸气的振转跃迁的泛频和组合频的许多谱线进行

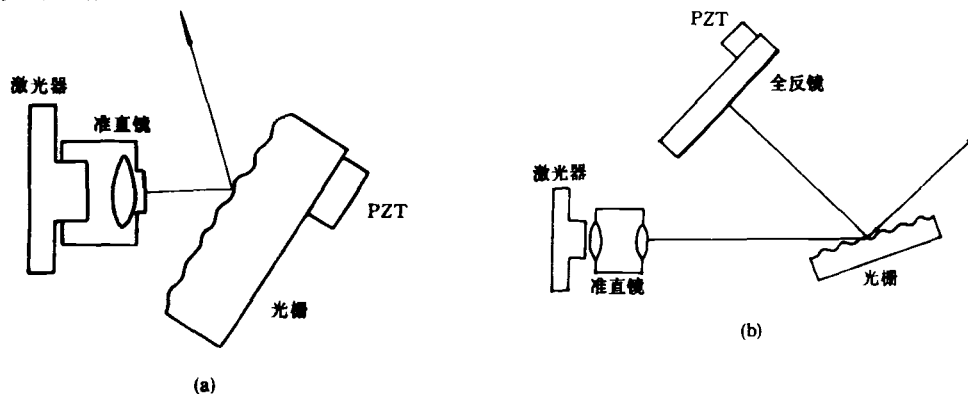


图1 腔外腔调谐波长  
(a) Littrow 装置; (b) Littman 装置

了观测.  $\text{NH}_3$  分子的  $2\nu_1$ ,  $2\nu_2$  或  $\nu_1 + \nu_2$  振动跃迁和  $\text{H}_2\text{O}$  分子的  $2\nu_2 + \nu_3$  跃迁尽管是弱吸收线, 但 Ohtsu 及其合作者使用  $1.5\mu\text{m}$  InGaAsP 激光器检测灵敏度却达  $2.3 \times 10^{-3}$  Torr/m 光程<sup>[8]</sup>. 在研究  $\text{H}_2\text{O}$  分子的  $2\nu_1 + \nu_2 + \nu_3$  泛频振动跃迁时, Fukuoka 等使用 810–840nm AlGaAs 激光器对其吸收线的波长进行测量, 其精度为  $1 \times 10^{-7}$ – $1 \times 10^{-8}$ <sup>[9]</sup>. 在这些先行者的研究工作之后, Kinugawa 和 Sasada 等用扫频的分布反馈激光器 (扫频范围 1.5THz) 研究了  $\text{C}_2\text{H}_2$  和 HCN 等有机分子<sup>[10]</sup>. 现已研制成功 0.75–0.88 $\mu\text{m}$ , 1.3 $\mu\text{m}$  和 1.5 $\mu\text{m}$  波段的高灵敏度光谱仪, 其吸收灵敏度达  $2 \times 10^{-6}$ . 用此光谱仪对  $\text{NH}_3$  分子进行研究, 发现当振动量子数增加时,  $\text{NH}_3$  分子发生由正常模向局域模的转移. 此实验结果得到理论分析的肯定. 半导体激光器易于频率调制, 使用频率调制技术, 光谱的灵敏度可进一步提高. 例如, Kroll 等人利用调制的 760nm 半导体激光器二阶微分光谱检测技术, 对  $\text{O}_2$  的  $X^1\Sigma_g^- \rightarrow b^1\Sigma_g^+$  (0, 0) 跃迁的转动谱线进行了研究<sup>[11]</sup>.

原子蒸气的电子跃迁谱线亦进行过不少研究, 其中包括 Rb, Cs 和稀有气体. 稀有气体主要是用光电流光谱进行的. 它们具有很高的灵敏度, 但由于放电等离子体的不稳定和斯塔克位移, 在频率复现性上有一定困难.

此外使用多步激发能使碱金属原子处于里德伯态. 最早的报道是 Fabre 及其合作者使用染料激光器及 AlGaAs 半导体激光器激发 Na 的  $n^2F$  里德伯态<sup>[12]</sup>. 第一步  $3S_{1/2} \rightarrow 3P_3$  用 590nm 染料激光器, 第二步  $3P_1 \rightarrow 3D_{3/2}$  用 819nm 半导体激光器, 第三步  $3D_{3/2} \rightarrow nF$  使用  $\sim 823\text{nm}$  半导体激光器, 获得了有关  $n \sim 30$  的里德伯态的详细知识.

## 2. 非线性光谱

原子蒸气的大部分电子跃迁谱线位于可见光波段, 因此需用短波长激光器. 解决此问题的一个办法是使用二倍频. 例如, Sukurai 和 Yamada 将 AlGaAs 激光器倍频到 0.4 $\mu\text{m}$ , 测量了  $\text{K}$  ( $5p^2P_{3/2} \leftarrow 4s^2S_{1/2}$ ,  $5p^2P_{1/2} \leftarrow 4s^2S_{1/2}$ ) 和 Al

( $3p^2P_{3/2} \leftarrow 4s^2S_{1/2}$ ) 的强谱线<sup>[13]</sup>. 类似地, 使用 1.56 $\mu\text{m}$  InGaAsP 激光器二倍频对 Rb 线进行了测量.

原子的无多普勒光谱可用非线性光谱饱和吸收法观测. 最早的例子是对 Rb, Cs 原子完成的. 使用 780nm AlGaAs 激光器测得  $^{87}\text{Rb}$   $D_2$  线的微分线型, 获得包括交叉共振线在内的共 11 条窄谱线. 另一个例子是用 0.78 $\mu\text{m}$  AlGaAs 激光器作泵浦光, 1.56 $\mu\text{m}$  InGaAsP 激光器的二倍频为探测光, 测得 Rb 的无多普勒光谱; Rb 线用来作为频率参考将泵浦光和探测光同时加以稳定, Tino 等用射频放电产生亚稳态氧原子, 然后用 777.1nm 半导体激光器进行  $3s^5S_2 - 3p^5P_3$  跃迁, 从而获得  $^{17}\text{O}$  亚稳态  $3s^5S_2$  的超精细结构<sup>[14]</sup>. 近来, 670nm 的 InGaAlP 激光器已有商品出售, Schaumann 等用降温到  $-70^\circ\text{C}$  使波长降到 656nm, 已观测到氢原子巴耳末  $\alpha$  线的饱和吸收光谱<sup>[15]</sup>. Hunter 等使用包括 Littrow 光栅和标准具的外腔半导体激光器选出单模并调谐波长, 用来精确测定 Li  $D_1$  线的斯塔克位移<sup>[16]</sup>.

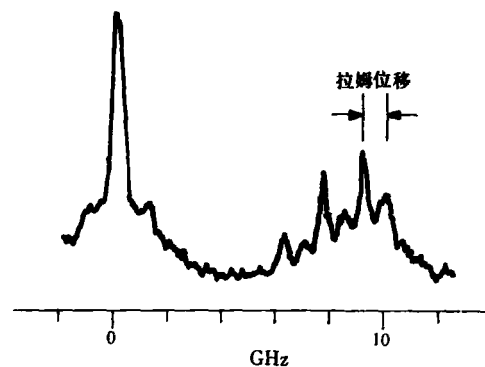


图2 氢巴耳末  $\alpha$  线饱和和吸收光谱

## 3. 原子的冷却与陷阱

随着激光频率调控技术的进展, 将真空中原子的运动减速和利用激光束将原子限制在局部体积内的实验研究最近几年发展迅速. 较早期是利用多普勒冷却机制, 原理是当激光频率稍低于原子的共振频率时激光驻波的光压可使原子运动速度减慢. 这种多普勒冷却机制能达到的最低温度约为  $100\mu\text{K}$ . 1988 年提出光泵浦新冷却机制, 实验室已报道的最低温度为  $2\mu\text{K}$ ,

这相当于原子的热运动速度每秒只有几厘米。现在已有可能将一定数目的原子(例如 $10^7$ 个)局限在一有限体积内持续时间超过数分钟,而原子数密度达到 $1 \times 10^{11} \text{cm}^{-3}$ 。在这种高密度情形下,受限制的原子呈现出一种类似粘胶流体的特性,故称为光学粘胶。最初,原子冷却和光学粘胶实验都是使用几台频率不同的窄线宽染料激光器,价格昂贵。由于半导体激光器可高效率地控制和调制频率,现已用来代替染料激光

器进行实验。Sesko 及其合作者用 $0.85 \mu\text{m}$  AlGaAs 激光器调谐到 Cs 原子共振线的红端,在三维驻波场内已产生包括 $5 \times 10^7$ 个 Cs 原子,温度为 $100 \mu\text{K}$  的光学粘胶<sup>[17]</sup>。另一个半导体激光冷却实验,已观测到在基态超精细结构之间 Cs 原子钟跃迁;由于温度低,相互作用时间已达 20ms,相当于只有 44Hz 的线宽,作用体积小于  $1 \text{cm}^3$ <sup>[18]</sup>。使用半导体激光器冷却 Rb 原子和稀有气体原子也有报道。

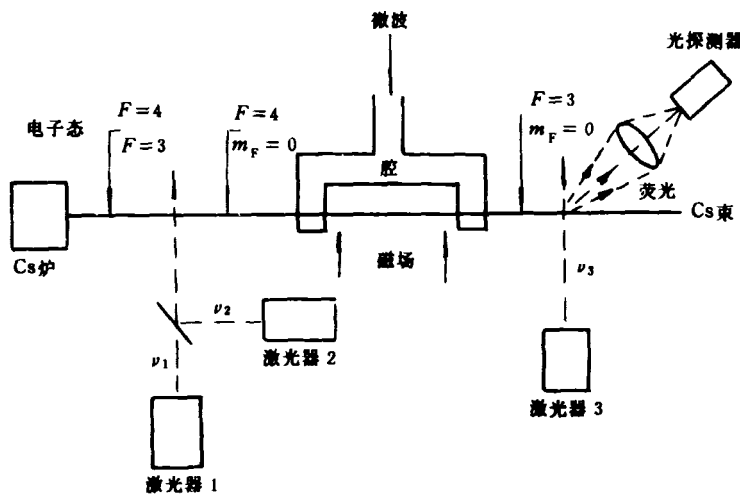


图3 光泵 Cs 原子钟

#### 4. 光泵浦原子钟

半导体激光器已应用于作为频率基准的原子钟研究。原子钟是一微波振荡器。Cs 原子钟的振荡频率约为 9.2GHz,对应于 Cs 原子基态超精细结构  $F=4, m_F=0$  到  $F=3, m_F=0$  的跃迁。由于 Cs 钟的频率精确度非常高,故用来作为时间基准。光泵浦 Cs 钟是使用两台  $0.85 \mu\text{m}$  AlGaAs 激光器对原子束进行态选择(使原子处于  $F=4, m_F=0$  的子能级)。然后,原子束进入微波腔内进行原子钟频率的跃迁。出射原子束中出现有  $F=3$  子态的原子可用另一台半导体激光器自  $F=3$  向上激发,并通过感生荧光来检测。上述光泵浦方案早在十多年以前就已提出,但由于缺乏频率可控的半导体激光器而进展缓慢。近年来,随着半导体激光器的发展,此方案已获得显著进展。使用光泵浦,频率精度高于  $1 \times 10^{-14}$  的 Cs 钟可望在不久实现。进一步还

可把激光冷却技术用于 Cs 原子钟,使频率精度更高。工作频率为 6.8GHz 的 Rb 原子钟也可使用  $0.78 \mu\text{m}$  AlGaAs 激光器作为光泵浦源。

- [1] J. C. Camparo, *Contemp. Phys.*, **26**(1985),443.
- [2] C. E. Wieman and L. Hollberg, *Rev. Sci. Instrum.*, **62**(1991),1.
- [3] B. Masterson and J. Webb, *Photonics Spectra*, May (1992),119.
- [4] M. Ohtsu and K. Nakagawa, *Spectroscopy by Semiconductor Lasers*, Y. Yamamoto ed. Cohenrence, John Wiley & Sons Inc., New York, (1991),159.
- [5] B. Dahmani et al., *Opt. Lett.*, **12**(1987),876.
- [6] K. C. Harvey and C. J. Myatt, *Opt. Lett.*, **16**(1991).
- [7] B. Bølger and J. C. Diels, *Phys. Lett. A*, **28**(1968), 401.
- [8] M. Ohtsu et al., *Jap. J. Appl. Phys.*, **22**(1983), 1553.
- [9] K. Fukuoka et al., *Jap. J. Appl. Phys.*, **23**(1984), L117.

- [10] H. Sasada, *J. Chem. Phys.*, **88**(1988),767.  
 [11] M. Kroll et al., *Appl. Phys. Lett.*, **51**(1987),1465.  
 [12] C. Fabre et al., *J. Phys. B*, **17**(1984),3217.  
 [13] K. Sakurai and N. Yamada, *Opt. Lett.*, **14**(1989), 233.  
 [14] G. M. Tino et al., *Phys. Rev. Lett.*, **64**(1990), 2999.  
 [15] B. Scheumann et al., CLEO/IQEC'90, Paper QThI9.  
 [16] L. R. Hunter et al., *Phys. Rev. A*, **44**(1991),6140.  
 [17] D. Sesko et al., *J. Opt. Soc. Am. B*, **5**(1988),1225.  
 [18] D. Sesko and C. E. Wieman, *Opt. Lett.*, **14**(1989), 269.

## 无限层结构的高 $T_c$ 氧化物超导体

王劲松 张其瑞

(浙江大学物理系,杭州 310027)

综述了无限层结构的高  $T_c$  氧化物超导体的发现及其研究进展.着重介绍了空穴型和电子型的块体及薄膜等不同样品的合成技术与物性.最后强调指出,无限层结构为高温超导体机理和材料的研究提供了理想的模型系统.

自1986年发现 La-Ba-Cu-O 的高温超导电性以来,这类新型的高  $T_c$  氧化物超导体的总数已达70多种,其最高  $T_c$  为127K.尽管人们对其晶体结构、电子结构以及超导态和正常态特性等已有较深入的认识,但就高温超导机理而言,至今仍未得到满意的解释.究其原因,这主要是由于这类超导体本身具有许多新的特点,例如组成和结构上的复杂性以及它们对性能极为敏感等.这种状况也极大地影响着高温超导体实际应用的发展.

一般而言,在高  $T_c$  铜氧化合物的晶体结构中,按性质和作用可划分为四种层状单元,即阳离子层、电荷转移层、载流子库层和导电层.以  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  为例,它们分别对应于 Y 层、BaO 层、CuO 链层和  $\text{CuO}_2$  平面层.化学掺杂或改变氧含量主要是在载流子层进行.电荷转移层介于载流子层与  $\text{CuO}_2$  层之间,是电荷转移的“桥梁”.阳离子层位于  $\text{CuO}_2$  平面层之间,仅在结构元胞中  $\text{CuO}_2$  平面数  $\geq 2$  的体系中才存在.阳离子层也可进行化学掺杂. $\text{CuO}_2$  平面层是产生超导电性的“舞台”,只要这一层上的迁移载流子浓度合适,体系必然存在超导电性.根据上述分析,对铜氧化物超导体而言,最简单的组分和结构应由  $\text{CuO}_2$  平面层和阳离子层构成,如图1

所示.这种结构即所谓无限层结构(infinite layer structure),化学式为  $\text{ACuO}_2$ ,A 为 Ca, Sr 或 Ba.实际上,早在70年代,人们<sup>[1,2]</sup>就已合成了  $\text{SrCuO}_2$  和  $\text{BaCuO}_2$ ,但它们均不具有无限层结构. $\text{SrCuO}_2$  为  $a \times b \times c = 3.58 \times 16.3 \times 3.91 \text{ \AA}^3$  的复杂正交结构, $\text{BaCuO}_2$  为  $a = 18.3 \text{ \AA}$  的复杂立方相结构,它们属于  $\text{ACuO}_2$  的同分异构体.这些结构与图1中无限层结构的最重要区别就是完全没有  $\text{CuO}_2$  平面,这自然也就谈不上产生超导电性.

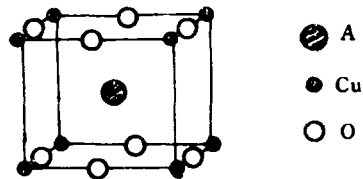


图1 无限层结构  $\text{ACuO}_2$  示意图

1988年, Siegrist 等<sup>[3]</sup>首先合成了具有无限层结构的  $\text{Ca}_{0.86}\text{Sr}_{0.14}\text{CuO}_2$ , 采用的是常压下的固态反应法.他们未观测到超导电性.1989年, Vaknin 等<sup>[4]</sup>以类似的常压固相反应法合成了无限层结构的  $\text{Ca}_{0.83}\text{Sr}_{0.15}\text{CuO}_2$ .中子衍射结果给出其晶格为四方相( $a = 3.86 \text{ \AA}$ ,  $c = 3.20 \text{ \AA}$ ),且体系具有三维反铁磁性,  $T_N = 537\text{K}$ ,每个 Cu 原子的平均有效磁矩为  $0.51\mu_B$ .众所周知,氧化物超导体都是在反铁磁的原型相(parent)中引