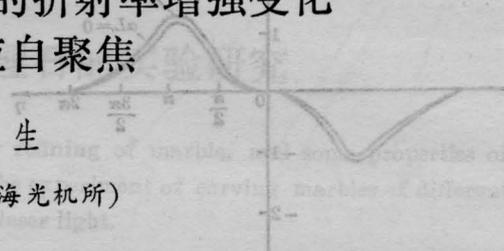


双光束共振耦合引起的折射率增强变化和喇曼感应自聚焦

赫光生

(中国科学院上海光机所)



摘要: 讨论了在波长不同的两单色激光束作用下, 三次非线性光学介质折射率感应变化的共振增强特性。分别就双光子和频共振和双光子差频共振两种情况, 导出了介质折射率非线性变化量的表示式; 在实验上观察到由双光束差频喇曼共振作用导致的感应自聚焦现象, 与理论结论相符合。

Enhanced refractive-index change of medium by two-beam resonance-coupling

He Guangsheng

(Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Academia Sinica, Shanghai)

Abstract: Resonance enhanced refractive-index change induced by two incident beams of different frequencies is discussed. The expressions of the coupled nonlinear refractive-index change are given for the sum-frequency and difference-frequency two-photon resonance conditions. Some experimental results of calcite, fused quartz fibre and benzene samples are discussed briefly.

一、两束单色激光作用下介质折射率的感应变化

在一般情况下, 光学介质内电场强度矢量 E 、电位移矢量 D 和电极化强度矢量 P 的单色傅里叶分量之间满足如下基本关系:

$$D(\omega) = E(\omega) + 4\pi P(\omega) \quad (1)$$

介电常数 $\epsilon(\omega)$ 则按下述关系定义:

$$D(\omega) = \epsilon(\omega) E(\omega) \quad (2)$$

若入射光场为普通弱光, 在线性近似下, $P(\omega) \approx P^{(1)}(\omega) = \chi^{(1)}(\omega) E(\omega)$, 这里

$\chi^{(1)}(\omega)$ 为介质线性电极化率张量。若入射光场为较强的激光, 则必须考虑非线性电极化效应的贡献, 从而将引起介质折射率的感应变化。

设所考虑的介质为光学各向同性介质, 即不考虑二次非线性电极化效应的贡献; 其次, 假设两不同频率的入射光场均沿同一方向(如 x 轴方向)线偏振, 在上述条件下, 由方程(1)出发, 对其中一个入射光频率组分 ω_1 可写出如下的标量关系式

$$D(\omega_1) = E(\omega_1) + 4\pi P^{(1)}(\omega_1) + 4\pi P^{(3)}(\omega_1)$$

收稿日期: 1985年4月11日。

$$= [1 + 4\pi\chi_{xx}^{(1)}(\omega_1)]E(\omega_1) + 4\pi P^{(3)}(\omega_1) \quad (3)$$

式中的 $D(\omega_1)$ 和 $P^{(1)}(\omega_1)$ 、 $P^{(3)}(\omega_1)$ 表示在入射光偏振方向 (x 轴) 上的投影分量, 其中三次非线性电极化强度分量可进一步写为

$$P^{(3)}(\omega_1) = \chi_{xxx}^{(3)}(\omega_1, -\omega_1, \omega_1) |E(\omega_1)|^2 E(\omega_1) + \chi_{xxx}^{(3)}(\omega_2, -\omega_2, \omega_1) |E(\omega_2)|^2 E(\omega_1) \quad (4)$$

为使公式推导过程更加简明起见, 在以下的推导过程中将进一步省略电极化率张量元的直角坐标下角标, 亦即令

$$\chi_{xx}^{(1)} \Rightarrow \chi^{(1)}, \chi_{xxx}^{(3)} \Rightarrow \chi^{(3)},$$

将(4)式代入(3)式并利用此情况下介电常数的定义公式 $D(\omega_1) = \varepsilon(\omega_1)E(\omega_1)$, 可求出 ω_1 频率处介质的广义折射率表示式

$$n(\omega_1) = \sqrt{\varepsilon(\omega_1)} = \{ [1 + 4\pi\chi^{(1)}(\omega_1)] + 4\pi[\chi^{(3)}(\omega_1, -\omega_1, \omega_1) |E(\omega_1)|^2 + \chi^{(3)}(\omega_2, -\omega_2, \omega_1) |E(\omega_2)|^2] \}^{1/2}$$

考虑到第二个方括号内的量远小于第一方括号的量(而它恰好等于介质的普通介电常数 ε_0), 则上式可进一步近似展开为如下形式:

$$n(\omega_1) \approx \sqrt{\varepsilon_0(\omega_1)} \left\{ 1 + \frac{2\pi}{\varepsilon_0(\omega_1)} \times [\chi^{(3)}(\omega_1, -\omega_1, \omega_1) |E(\omega_1)|^2 + \chi^{(3)}(\omega_2, -\omega_2, \omega_1) |E(\omega_2)|^2] \right\} = \left[n_0(\omega_1) + \frac{2\pi}{n_0(\omega_1)} \times \chi^{(3)}(\omega_1, -\omega_1, \omega_1) |E(\omega_1)|^2 + \frac{2\pi}{n_0(\omega_1)} \times \chi^{(3)}(\omega_2, -\omega_2, \omega_1) |E(\omega_2)|^2 \right] \quad (5)$$

设两入射光频率 ω_1 、 ω_2 以及它们的组合 ($\omega_1 \pm \omega_2$) 均不与介质任何本征能级间的跃迁频率发生共振, 则(5)式中方括号内的三个量均为实数——其中第一项 $n_0(\omega_1)$ 为弱光作用下介质的普通折射率; 第二项表示 ω_1 强光单

独入射引起的折射率变化, 其特点是变化量与入射光本身光强 $I(\omega_1) \propto |E(\omega_1)|^2$ 成正比; 第三项表示 ω_1 与 ω_2 强光同时入射作用下, 由双光束耦合引起的折射率附加变化, 其特点是变化量与另外一束入射光的光强 $I(\omega_2) \propto |E(\omega_2)|^2$ 成正比。按照相似的推导程序, 我们亦可求出 ω_2 频率处的介质折射率表示式。在此基础上, 我们可把感兴趣的 ω_1 与 ω_2 频率处由双光束耦合作用导致的介质折射率的附加变化一道写出为

$$\Delta n(\omega_1) = \frac{2\pi}{n_0(\omega_1)} \times \chi^{(3)}(\omega_2, -\omega_2, \omega_1) |E(\omega_2)|^2 \quad \left. \begin{array}{l} \Delta n(\omega_2) = \frac{2\pi}{n_0(\omega_2)} \times \chi^{(3)}(\omega_1, -\omega_1, \omega_2) |E(\omega_1)|^2 \end{array} \right\} \quad (6)$$

在上述非共振的情况下, 式中三阶非线性电极化率张量元的数值是相当小的; 与此相应, 由双光束耦合作用引起的折射率附加变化量也比较小。在忽略介质非共振三阶非线性电极化率张量元色散效应时, 下列关系式近似地成立:

$$\chi^{(2)}(\omega_2, -\omega_2, \omega_1) \approx \chi^{(3)}(\omega_1, -\omega_1, \omega_2) \approx \chi^{(3)}(\omega_1, -\omega_1, \omega_1) \approx \chi^{(3)}(\omega_2, -\omega_2, \omega_2)$$

下面的分析将表明, 当两入射光频率之组合 ($\omega_1 \pm \omega_2$) 与介质某一对本征能级间的跃迁频率发生共振时, 可出现下述情况

$$\chi^{(3)}(\omega_2, -\omega_2, \omega_1), \chi^{(3)}(\omega_1, -\omega_1, \omega_2) \gg \chi^{(3)}(\omega_2, -\omega_2, \omega_2), \chi^{(3)}(\omega_1, -\omega_1, \omega_1)$$

从而可使双光束共振耦合引起的折射率变化, 远大于与该光束单独入射时引起的折射率变化。

二、耦合折射率变化的共振增强

先考虑 $\omega_1 + \omega_2 \approx \omega_{i0}$ 的情况。此时两入射光频率之和与介质某一对本征能级(这里应为电子能级)间的跃迁频率 ω_{i0} 发生共振。

仍然采用上节中关于两入射光偏振状态的假设, 并从三阶非线性电极化率的普遍表示式出发^[1], 利用双光子和频共振条件, 可求出(6)式中有关电极化率张量元的具体形式:

$$\left. \begin{aligned} \chi^{(3)}(\omega_2, -\omega_2, \omega_1) &= K' \cdot \frac{1}{\omega_{t0} - (\omega_1 + \omega_2) - i\Gamma} \\ \chi^{(3)}(\omega_1, -\omega_1, \omega_2) &= K' \cdot \frac{1}{\omega_{t0} - (\omega_1 + \omega_2) - i\Gamma} \end{aligned} \right\} \quad (7)$$

式中 2Γ 为非饱和情况下对应着 $(\omega_1 + \omega_2)$ 双光子吸收跃迁的谱线宽度, 而系数 K' 为

$$K' = \frac{N_0 - N_t}{6\hbar^3} \cdot \left| \sum_b \left(\frac{(p_x)_{0b}(p_x)_{bt}}{\omega_{b0} - \omega_1} + \frac{(p_x)_{0b}(p_x)_{bt}}{\omega_{b0} - \omega_2} \right) \right|^2 \quad (8)$$

式中 N_0 和 N_t 分别为介质双光子和频共振吸收跃迁之低能级与高能级上的粒子数密度, 下角标 b 表示与完成从能级 0 至能级 t 双光子吸收跃迁有关的所有可能的中间能级, 而 $(p_x)_{0b}$ 与 $(p_x)_{bt}$ 则表示感应电偶极矩矢量算符在入射光偏振方向上的投影分量按不同本征能级计算的矩阵元。由(7)式可看出, 在满足双光子和频共振情况下, 表征多波耦合作用的三阶非线性电极化率张量元取复数形式: 其中虚数部分表征由双光子吸收作用而导致对入射光的衰减, 实数部分表征由共振耦合作用而导致介质折射率的增强变化。将表示式(7)中的实部代入公式(6)可求得折射率的共振增强变化量为

$$\left. \begin{aligned} \Delta n(\omega_1) &= \frac{2\pi}{n_0(\omega_1)} \cdot K' \cdot |E(\omega_2)|^2 \\ &\quad \times \frac{\omega_{t0} - (\omega_1 + \omega_2)}{[\omega_{t0} - (\omega_1 + \omega_2)]^2 + \Gamma^2} \\ \Delta n(\omega_2) &= \frac{2\pi}{n_0(\omega_2)} \cdot K' \cdot |E(\omega_1)|^2 \\ &\quad \times \frac{\omega_{t0} - (\omega_1 + \omega_2)}{[\omega_{t0} - (\omega_1 + \omega_2)]^2 + \Gamma^2} \end{aligned} \right\} \quad (9)$$

由上式可看出, 在两入射光强相同的条件下, 由共振耦合引起的两入射光频率处的折射率变化量也相同(这里忽略由色散效应引起的

普通折射率 $n_0(\omega_1)$ 与 $n_0(\omega_2)$ 的较小的差别)。

下面进一步考虑 $\omega_1 - \omega_2 \approx \omega_{t0}$ 的情况。此时两入射光频率之差与介质某一对本征能级(可以是电子能级, 亦可以是振动能级)间的跃迁频率 ω_{t0} 发生共振。在介质为各向同性以及两入射光沿同一方向线偏振的假设前提下, 考虑到双光子差频共振条件后, 可求出(6)式中三阶非线性电极化率张量元的表示式为

$$\left. \begin{aligned} \chi^{(3)}(\omega_2, -\omega_2, \omega_1) &= K'' \cdot \frac{1}{\omega_{t0} - (\omega_1 - \omega_2) - i\Gamma} \\ \chi^{(3)}(\omega_1, -\omega_1, \omega_2) &= K'' \cdot \frac{1}{\omega_{t0} - (\omega_1 - \omega_2) + i\Gamma} \end{aligned} \right\} \quad (10)$$

式中 2Γ 为与由能级 0 至能级 t 跃迁相对应的普通喇曼散射谱线的宽度, 而系数 K'' 为

$$K'' = \frac{N_0 - N_t}{6\hbar^3} \cdot \left| \sum_b \left(\frac{(p_x)_{0b}(p_x)_{bt}}{\omega_{b0} - \omega_1} + \frac{(p_x)_{0b}(p_x)_{bt}}{\omega_{b0} + \omega_2} \right) \right|^2 \quad (11)$$

式中 N_0 与 N_t 分别为喇曼跃迁起始与终止能级的粒子数密度, 其他符号和物理量的解释与公式(8)相同。由表示式(10)可看出, 在满足双光子差频喇曼共振的情况下, 描述多波耦合作用的三阶非线性电极化率张量元亦取复数形式: 其中虚数部分表征两入射光束在介质内传输过程中的光强度化 (ω_2 光束的喇曼增益与 ω_1 光束的反喇曼衰减); 而实数部分则表征由共振耦合作用而导致介质折射率的增强变化。将表示式(10)中的实部代入公式(6)后可求得

$$\left. \begin{aligned} \Delta n(\omega_1) &= \frac{2\pi}{n_0(\omega_1)} \cdot K'' \cdot |E(\omega_2)|^2 \\ &\quad \times \frac{\omega_r - (\omega_1 - \omega_2)}{[\omega_r - (\omega_1 - \omega_2)]^2 + \Gamma^2} \\ \Delta n(\omega_2) &= \frac{2\pi}{n_0(\omega_2)} \cdot K'' \cdot |E(\omega_1)|^2 \\ &\quad \times \frac{\omega_r - (\omega_1 - \omega_2)}{[\omega_r - (\omega_1 - \omega_2)]^2 + \Gamma^2} \end{aligned} \right\} \quad (12)$$

式中用 $\omega_r = \omega_{10}$ 表示介质某一喇曼跃迁频率, 2Γ 为该喇曼跃迁的谱线宽度。由上式可看出, 在两入射光光强相同的情况下, 有 $\Delta n(\omega_1) \approx \Delta n(\omega_2)$ 。图 1 给出了当两入射光光强为给定情况下, 由双光子差频共振导致折射率变化的调谐共振曲线。由 (12) 式和图 1 均可看出, 当 $(\omega_1 - \omega_2)$ 值趋近于 ω_r 时可引起折射率的较大增强变化。

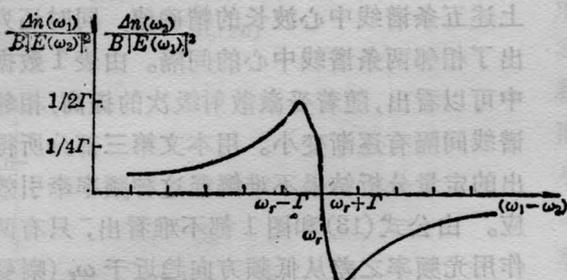


图 1 双光子差频共振引起的折射率耦合变化随 $(\omega_1 - \omega_2)$ 的共振调谐曲线 (纵座标中所含比例因子 $B = 2\pi K''/n_0$)

三、几种判断实验结果

为了说明上面所得出的分析结果的正确性和实际应用意义, 下面介绍我们所做的实验结果。

1. 双波耦合受激喇曼散射实验^[2]

以方解石晶体为喇曼介质, 分别控制波长为 $\lambda_1 \approx 532 \text{ nm}$ 和 $\lambda_2 \approx 564.6 \text{ nm}$ 的两束脉冲激光的光强, 使它们在单独入射到样品时不能产生各自的受激喇曼散射; 但如果在同样光强水平下使两束激光同时重合入射到样品, 并通过调谐使得两入射光频差与方解石晶体的 1086 cm^{-1} 喇曼模发生共振, 则可观察到双入射光束各自受激喇曼散射同时出现。测量结果表明, 由于双光束共振耦合的作用, 使得各自的表现受激喇曼散射阈值降低约一倍。上述效应的出现, 在本质上正是由于双光束差频喇曼共振导致方解石介质折射率感应增强变化的结果。考虑到双光束是聚焦入射到晶体中, 在焦平面附近光强横向

分布近似呈高斯状分布, 因此光束中心区折射率增加变化大于边缘区, 从而引起耦合自聚焦。这种效应与单光束入射到喇曼介质, 通过光克尔效应或电致伸缩效应产生自聚焦, 使受激喇曼散射表现阈值下降的实验事实有一定的相似之处。

2. 石英玻璃纤维中的喇曼共振自聚焦效应

以芯区掺 Ge 的多模石英玻璃纤维为喇曼介质, 采用波长 $\lambda_0 \approx 532 \text{ nm}$ 的脉冲调 Q 激光作单波聚焦入射激励, 对长度为 100 m 的光纤样品而言, 当入射光功率密度为 $(1 \sim 3) \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$ 时, 观察到掺 Ge 石英玻璃纤维中频移约为 450 cm^{-1} 喇曼模的级联受激喇曼散射。图 2 为在距离光纤样品输出端约 3 cm 处的近场图中间放垂直狭缝 (缝高远大于光斑尺寸) 进行取样后, 用准直光栅分光拍得的光谱照片。图中右面第一根代表 $\lambda_0 \approx 532 \text{ nm}$ 入射激光线, 左面其他各线则代表第一级至第七级斯托克斯受激喇曼散射谱线, 相邻谱线中心间隔近似为 450 cm^{-1} , 各散射线宽约 150 cm^{-1} ; 各谱线的垂直高度, 则代表输出光束近场图中不同光谱辐射成分的相对直径。由图 2 中可明显看出, 高阶斯托克斯受激喇曼散射的光斑尺寸有明显压缩变小的趋势。用喇曼共振增强折射率感应变化的观点不难解释上述效应。考虑到入射激光 (λ_0) 在光纤传输过程中横向光强分布不是绝对均匀, 而相邻两谱线之间又可自动满足喇曼共振条件, 因此折射率增强变化的结果, 有

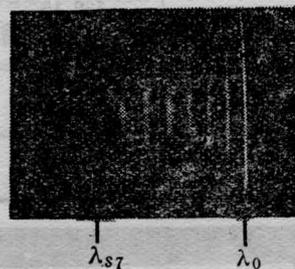


图 2 掺 Ge 光纤样品不同级次受激喇曼散射输出近场图中光斑直径的相对分布

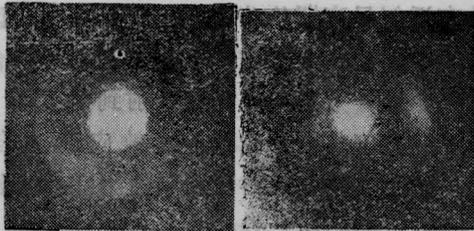


图 3 (a) (b)

(a) 通过透绿滤光片拍摄的光纤输出端面场图照片
(b) 通过透红滤光片拍摄的光纤输出端面场图照片

使各相邻级次的受激散射光束截面被逐渐压缩的趋势。

采用光纤样品输出端面场图分布的直接显微照相法，同样证明了由图 2 所得出的自聚焦结论。图 3(a) 为通过绿色玻璃滤光片拍摄光纤输出端面的显微照片，可看出 $\lambda_0 \approx 532 \text{ nm}$ 入射激光基本充满了光纤的芯区(芯径约 $50 \mu\text{m}$ ，光纤外径约 $125 \mu\text{m}$)；图 3(b) 为同样条件下通过红色玻璃滤光片(它能透过第三级至第七级受激散射光)拍得的照片，可看出较高级次的受激散射的确只占据光纤芯区的较小截面范围。

3. 苯中喇曼共振自聚焦引起的频率牵引效应

在与实验 2 相似的输入激励条件下，以内充液体苯的显微光波导系统作实验对象；在波导增益长度为 $7 \sim 10 \text{ m}$ ，入射激光聚焦功率密度约 $5 \times 10^9 \text{ W/cm}^2$ 量级以上时，可观察到苯频移为 992 cm^{-1} 喇曼模四级以上

的级联斯托克斯受激散射。入射激光的谱线宽度约为 0.05 cm^{-1} ，脉冲宽度约为 10 ns ，平面发散角约为 1 mrad ，聚焦透镜焦距为 $f = 5 \text{ cm}$ 。图 4 为采用 31 WI 型 1 m 光栅摄谱仪拍得的苯芯波导输出受激喇曼散射的光谱照片，由图中可看到除入射激光谱线外，尚存在一至四级斯托克斯受激散射谱线。表 1 给出采用 GDS50-1 型 1 m 光栅双单色仪测得上述五条谱线中心波长的精确值，同时还列出了相邻两条谱线中心的间隔。由表 1 数据中可以看出，随着受激散射级次的提高，相邻谱线间隔有逐渐变小。用本文第三部分所得出的定量分析结果不难解释这种频率牵引效应。由公式(13)和图 1 都不难看出，只有两作用光频率之差从低频方向趋近于 ω_r (喇曼跃迁中心频率)时，才可能产生折射率增大变化(从而可引起自聚焦)，并且这种折射率感应增大变化的极大值位于低频一侧，距 ω_r 的频差约等于自发喇曼线宽 Γ 的位置处。已知苯之 992 cm^{-1} 喇曼模散射线宽约为 $2 \sim 4 \text{ cm}^{-1}$ 左右，因此所观察到的高阶受激散射频率牵引范围与自发散射线宽范围大致符合。

图 5 给出了采用 1 m 光栅光谱仪测得的掺 Ge 多模石英光纤输出多阶级联 SRS 谱线间隔(以波数表示)随级次增大而变化的实验曲线，实验条件同图 2。由图 5 可看出，

(下转第 135 页)

表 1 苯之高阶受激喇曼散射的频率牵引效应

谱线级次	λ_0	λ_{s1}	λ_{s2}	λ_{s3}	λ_{s4}
中心波长(nm)	532.15 (± 0.01)	561.82 (± 0.01)	595 (± 0.01)	632.28 (± 0.02)	674.28 (± 0.04)
相邻谱线间隔 (cm^{-1})		$\left(\frac{1}{\lambda_0} - \frac{1}{\lambda_{s1}}\right)$ 992.4 (± 0.4)	$\left(\frac{1}{\lambda_{s1}} - \frac{1}{\lambda_{s2}}\right)$ 992.5 (± 0.4)	$\left(\frac{1}{\lambda_{s2}} - \frac{1}{\lambda_{s3}}\right)$ 991.0 (± 0.5)	$\left(\frac{1}{\lambda_{s3}} - \frac{1}{\lambda_{s4}}\right)$ 985 (± 1)

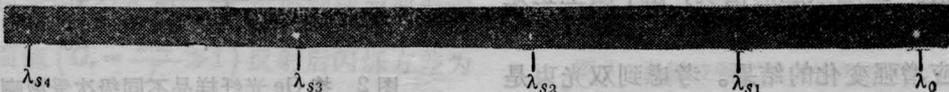


图 4 苯的级联受激喇曼散射光谱照片

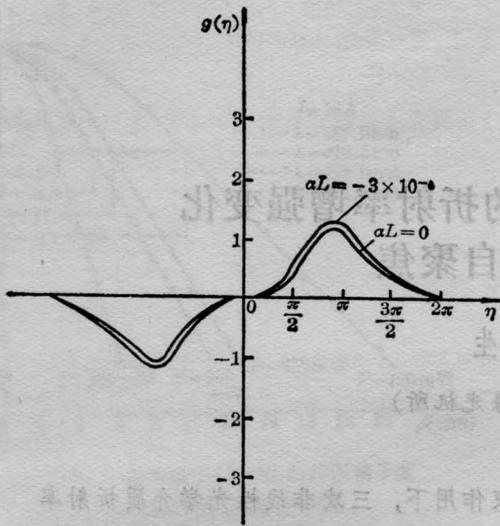


图2 空间变周期 Wiggler 场增益曲线

$$g(\eta) = \frac{G(0)}{\eta^3} \left\{ 2(1 - \cos \eta) - \left[1 + \frac{4(\alpha L)^2}{\eta^3} \right] \eta \sin \eta - \alpha L [2 - \eta \sin \eta] + (\alpha L)^2 [1 + \cos \eta] \right\}$$

由图1可见,在 αL 取值不超过一定范围时增益能大幅度地提高。如 $\alpha L=0.56$ 时,增益提高77%; $\alpha L=1.12$ 时,增益提高223%。与振幅线性梯度变化的 Wiggler 场

自由电子激光器的增益相比较^[2],在获得相同的增益时,振幅指数梯度变化的 Wiggler 场的振幅变化幅度只是前者的58%,亦即采用指数变化形式时,可在振幅变化幅度较小的情况下就能获得较高的增益。

图2是变周期 Wiggler 场自由电子激光器的增益方程曲线。由于近似条件限制, $|\alpha'| \leq 10^{-4}$, 当 $|\alpha'L| = 3 \times 10^{-4}$ 时,增益提高约0.01%。 $|\alpha'L|$ 取更大的值时增益可望得到进一步的提高。另外,当 α' 取负值,亦即空间周期长度 $\lambda_w = \frac{\lambda_0}{1 + \alpha'z}$ 沿电子运动方向增加时,增益才能得到提高。这与斯坦福大学 TWR 小组^[4]的结果一致。

参 考 文 献

- [1] 王润文;《中国激光》,1983,10, No. 7, 385.
- [2] 张大可,陈建文;《中国激光》,1985,12, No. 3, 129.
- [3] D. Prosnits *et al.*; "Physics of Quant. Electr.", 1987, Vol. 7, Addison-Wesley Publishing Company, p. 175.
- [4] *Laser und Optoelectronik*, 1984, 16, No. 3, 212~213.

(上接第140页)

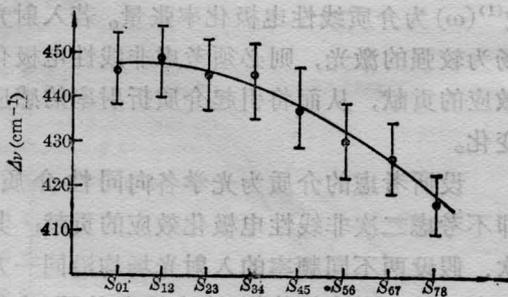


图5 掺 Ge 多模石英光纤多阶段级联 SRS 谱线间隔随级次增大的变化曲线

在 SRS 过程中产生喇曼增强自聚焦作用的同时,还将产生喇曼频率牵引效应,牵引量达到可与喇曼线宽相比的程度。

参加部分实验工作的尚有周福新、刘盾、唐定远、曹卓良等同志,作者谨致谢意。

参 考 文 献

- [1] P. N. Butcher; "Nonlinear optical phenomena", 1965. J. Ducuing; "Nonlinear optics", Ed. by P. G. Harper, B. S. Wherrett, 1977, p. 11~46.
- [2] 赫光生等;《中国激光》,1984,11, No. 2, 96~99.