

球体谐振腔(II)——球体腔中的喇曼振荡

钱 士 雄

(复旦大学物理系)

提 要

本文对球体谐振腔与法布里-珀罗腔作了比较。详细讨论了球体腔中产生的喇曼振荡、振荡输出谱及场分布等特性。从水滴及酒精液滴的实验结果分析了输出共振和输入共振,对实验中还观察到的液滴中的高阶斯托克斯振荡和组合斯托克斯振荡作了讨论。

关键词: 球体谐振腔, 喇曼振荡。

一、引 言

在固体或液体球粒的光的弹性散射谱中存在着许多结构峰^[1~3]。根据电磁场理论, 散射场可以展成一些矢量球谐函数的叠加。对于入射波为平面波的情况, 不同的矢量球谐函数的系数 a_n 和 b_n 如下式所示:

$$a_n = \frac{\mu n_1^2 j_n(n_1 x) [x j_n(x)]' - \mu_1 j_n(x) [n_1 x j_n(n_1 x)]'}{\mu n_1^2 j_n(n_1 x) [x h_n^{(1)}(x)]' - \mu_1 j_n(x) [n_1 x h_n^{(1)}(n_1 x)]'}, \quad (1)$$

$$b_n = \frac{\mu j_n(n_1 x) [x j_n(x)]' - \mu j_n(x) [n_1 x j_n(n_1 x)]'}{\mu j_n(n_1 x) [x h_n^{(1)}(x)]' - \mu h_n^{(1)}(x) [n_1 x j_n(n_1 x)]'}, \quad (2)$$

其中尺寸参数 $x=2\pi a/\lambda$, a 是球粒的半径, λ 是入射波的波长。在散射谱中的峰值 $x_{n,i}$ 处, 系数 a_n 和 b_n 可以有值为 1 的极大值。

实际上, 这些系数的极大值处即是这些球粒所对应的球体谐振腔的本征模。一个具有完善球形界面的固体球粒或液滴, 在本质上是一个球体腔。如同熟知的法布里-珀罗腔一样, 在这种球体腔中可以存在有许多电磁本征模。散射谱中散射峰的出现正是电磁本征模存在的标志。

我们对球体谐振腔与法布里-珀罗腔作一比较, 如图 1 所示。

一个无源法布里-珀罗腔仅由两块反射镜(平面或球面)组成。这个腔对入射波的调制反映在输出谱(即透射谱)中是一系列尖锐的极大, 对无吸收的反射镜, 透射极大等于 1。如图 1a 所示。而球体腔对入射平面波的调制就得到弹性散射谱, 球体腔中本征模的存在使得散射谱中出现许多结构峰, 如图 1b 所示。球体腔的主要特点在于, 腔所需要的光学反馈来自于球状介质与球外介质的界面处的内反射, 这种反馈基本上是无色散的; 它的本征模式是矢量球谐函数驻波。

如果将有增益的介质置入法布里-珀罗腔中, 当增益足以克服损耗而得到放大时, 就可以得到振荡输出, 这就是通常的激光振荡器。与此类似, 如果球粒是由具有增益的介质做成, 一旦这个球粒得到泵浦, 就可以在这种球体腔中产生振荡。实际上我们已经从液滴这种特

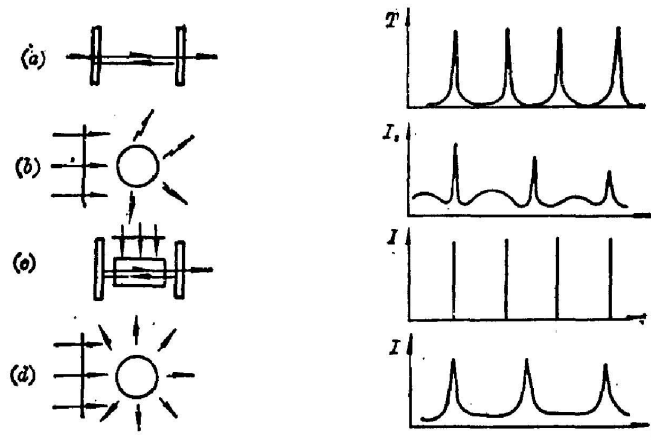


Fig. 1 Comparison between a Fabry-Perot cavity and a spherical resonant cavity
 (a) The passive Fabry-Perot cavity and its transmission spectrum; (b) elastic scattering from the spherical medium and the elastic scattering spectrum; (c) an active medium inside the Fabry-Perot cavity which acts as a laser cavity; (d) pumped by laser beam, spherical droplet can give oscillation like a spherical laser cavity

殊的球体腔中观察到多种振荡输出^[4,5]。本文主要讨论由喇曼增益引起的斯托克斯振荡。

表 1 列出球体谐振腔与法布里-珀罗腔性质的比较。

Table 1 The comparison between the spherical resonant cavity and Fabry-Perot cavity

	spherical resonant cavity	Fabry-Perot cavity
configuration	solid particle or liquid droplet	two plane(or spherical)mirrors or boundary with reflection
feedback	internal reflection of the boundary	mirror reflection
intrinsic mode	vector spherical harmonics	plane stationary wave or Gauss-Hermite mode
linewidth depend on	relative refractive index n, l	reflectivity of the mirror
range of Q	depend on n and l	usually ten to hundreds

二、实验装置

本实验采用 Q 开关 Nd:YAG 激光器的谐波输出(532 nm)作为泵浦源。用柱面透镜(或球面透镜) L_1 将泵浦光束聚焦于液滴上。柱面透镜的焦距为 30 cm。

液滴由振动小孔发生器产生。待产生液滴的液体被加压至 1.3 至 3 大气压后进入密闭室。在密闭室的下部底面上有一块中间有一小孔的不锈钢薄片,小孔的直径为 20 至 50 μm 。密闭室外有一个压电陶瓷环,在其上可以加调制电压,调制频率在 10~100 kHz 范围中可调。受压液体由于规则振动的作用而在小孔外形成一串液滴。实验表明,合理调节实验参数,可得到相当稳定的均匀液滴流,半径起伏值可低于 10^{-4} 。

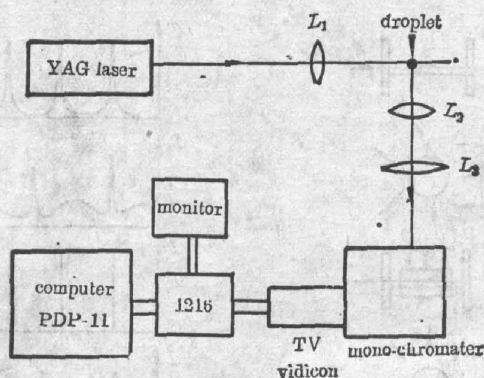


Fig. 2 Experimental set-up for detecting the Raman oscillation output from the liquid droplets. The OMA system used as a detection system consists of a monochromator (or triplemonochromator), a vidicon, a monitor and a computer

当使用染料溶液作为工作液体时,我们得到具有荧光增益的球体腔。如果采用纯净透明液体来制备液滴,则在可见波段上有经过喇曼过程而得到增益,由泵浦而产生振荡的液滴即是一个喇曼振荡器。

从振荡液滴发出的辐射,经透镜 L_2 和 L_3 聚焦于单色仪或三单色仪的入射狭缝上。在分光仪器的出射平面处装有光学多道分析仪(OMA)的接收头——硅增强靶摄像管(M1254),由它接收得到的一维或二维的光谱信号可直接显示或输入至专用计算机进行处理并贮存。利用这套 OMA 系统,可以记录一个或几个激光脉冲泵浦液滴所产生的喇曼振荡辐射,也可以同时分别记录空间相邻的几个液滴的发射光谱。整个实验装置图示于图 2。

三、喇曼振荡

从纯水、重水及酒精产生的液滴,我们已经得到它们的喇曼振荡输出^[4,5]。从液滴产生的喇曼振荡输出的主要特点是:

典型的振荡模式结构,输出谱与自发喇曼散射谱完全不同,它包含一组或几组等距排列的、有窄线宽的振荡峰,依赖于本征模的反馈不同,它们的强度也不同。

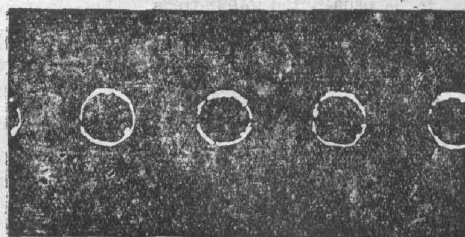


Fig. 3 Photograph of the oscillating droplets. The bright boundary clearly shows that the intense internal field is distributed near the liquid-air boundary

低的阈值,对于直径为 $60\mu\text{m}$ 的液滴,当聚焦泵浦光功率密度约为 $100\text{MW}/\text{cm}^2$ 时,即可以从酒精液滴得到喇曼振荡输出信号。一个泵浦激光脉冲在一个液滴的截面处的照射能量约为 $1\mu\text{J}$,若计及液滴的弹性散射,则真正进入液滴内部泵浦喇曼振荡的泵浦能量还要比这为小。对于纯水滴,由于它的喇曼线宽很宽(3400cm^{-1} 模的宽度有 300

cm^{-1} 左右),故所需的泵浦功率密度约为几百 MW/cm^2 至 GW/cm^2 。但这都低于在长

的光学水池(~ 10 cm)中 SRS 的阈值^[6,7]。

球体腔中的喇曼振荡是一种主要分布在球体界面附近的电磁驻波。从图 3 给出的有喇曼振荡的液滴的照片可以明显看到,发射主要来自于球体的边界而不是中心部分,这是与矢量球谱函数的场分布相一致的^[8]。

由水滴所得到的 20 进喇曼振荡输出谱示于图 4。记录这个光谱时用了多个激光脉冲,因而输出谱相应于几十个液滴的叠加贡献(在 20 迹所对应的空间范围中,大约有十个液滴,再计及记录时的多个光脉冲,故总共有几十个液滴起作用)。从图 4 可以见到,几十个水滴的喇曼振荡谱有清晰且相同的光谱分布。从对染料液滴的发射谱研究已经知道^[9],振荡峰的位置对液滴的大小是很灵敏的,微小的尺寸变化 Δa 都会引起峰的移动 $\Delta\lambda = (\Delta a/a) \cdot \lambda$ 。因此从得到的谱可以推断,实验中所用的液滴是十分均匀且稳定的。调节液滴发生器的驱动电压的频率,可以改变液滴的大小,输出谱就会有明显的变化。

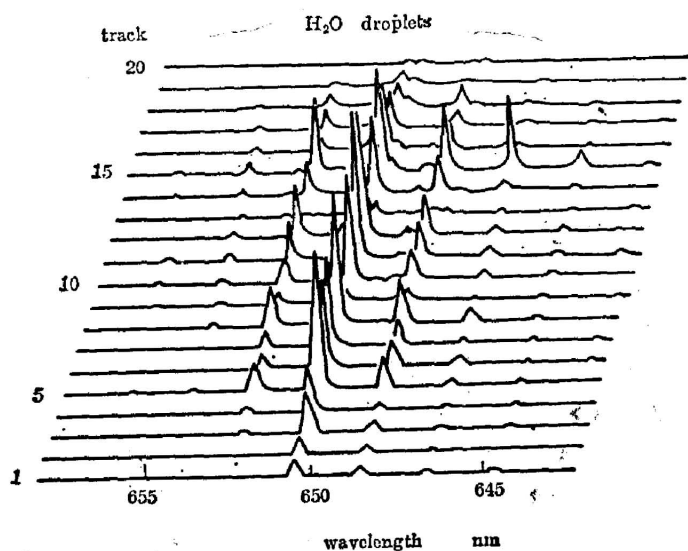


Fig. 4 The 20 tracks of Raman oscillation output spectra of the H_2O droplets, detected with multi-laser pulses. The fact that the spectrum of one track is similar to those of other tracks indicate the stability and reproducibility of the droplet stream

所有输出谱中的峰,都相应于球体谐振腔中的本征模,我们称其为输出共振。在宽的喇曼增益轮廓中,总会有一些波长对应于有足够反馈的本征模,这就是我们所观察到的振荡峰。

四、输入共振

除了输出共振以外,还可以存在另一种共振,即输入共振。它指的是,对于波长固定的入射泵浦激光,调节液滴的大小就可以调节它的尺寸参数 a 使与某个本征模相重合,这时液滴内部的入射场可以比原来非共振时有较大的增强,从而提高了喇曼增益,使液滴内部的振荡增强。这种输入共振可以从酒精液滴的喇曼振荡输出谱中看到,如图 5 所示。

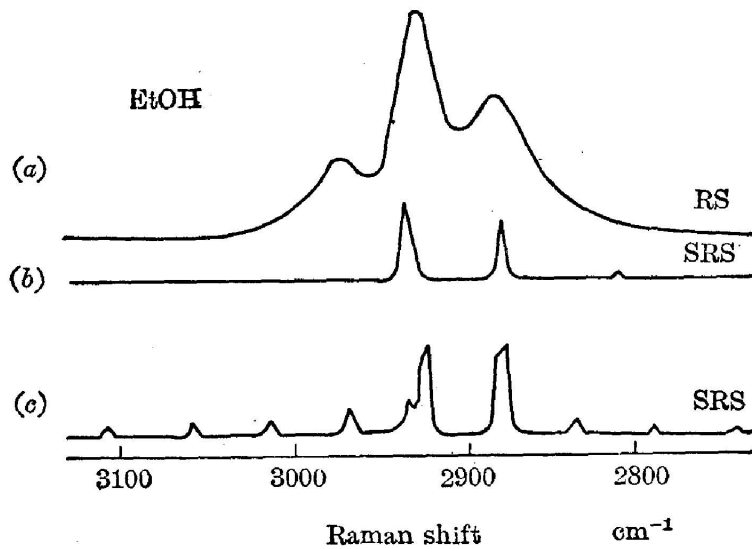


Fig. 5 Appearance of weak peaks on both sides of Raman bands of the ethanol molecule. a) spontaneous Raman spectrum, b) oscillation spectrum of EtOH droplets without input resonance, c) oscillation spectrum with input resonance

一般情况下,在喇曼频移 $2800 \sim 3100 \text{ cm}^{-1}$ 范围中,酒精液滴的振荡输出谱只有有限几个峰,而且集中在 100 cm^{-1} 宽的范围中。这是因为在这个区域中,酒精有三个喇曼活性模,即 2877 cm^{-1} 、 2930 cm^{-1} 及 2972 cm^{-1} ,其中以 2930 cm^{-1} 为最强。当泵浦功率密度低于 300 MW/cm^2 时,振荡模主要出现在 2930 cm^{-1} 模附近,有时在 2877 cm^{-1} 近旁也有出现,但在第三个弱的喇曼活性模 2972 cm^{-1} 处则不大易得到振荡。

但若仔细调节驱动电压的频率,即改变液滴的大小,我们发现,在某些周期性间隔的频率处,可以得到如图 5 所示的宽达 500 cm^{-1} 以上的振荡输出谱。这些新出现的振荡峰从中心向两边慢慢减弱,但在谱的两端仍清晰可见,它们之间的间隔基本恒定,是具有同一序数 l 的一组本征模。这种在喇曼谱线的极边缘部分的振荡峰的出现是起因于液滴内部泵浦场的明显增强。这正是输入共振的结果。

存在输入共振时的内部泵浦场的增强体现在两个方面:一是在原来液滴内部的前向和后向聚焦点处,入射场的强度会有明显增强^[10,11]。Chylek 和我们的计算都表明,在入射场达到共振时,球腔内部的场比之非共振情况时的场有极大的增强,增强因子与模数及序数有关,可以从几倍至几个量级,当然很高的增强因子将对应于极窄的本征模线宽,这在实际上是很难实现的。其次,由于输入共振激发了球体腔内部的本征模,它的场分布就是一种矢量球谐函数,主要分布在球体边界附近,这对于激发具有类似的场分布的喇曼振荡就显得很有利。

处于自发喇曼谱线边缘处的喇曼增益是很小的,对于离洛伦兹型谱线中心三倍线宽的位置处,喇曼增益 g 已下降一个量级,为了要使振荡在那些地方实现,必须有更强的泵浦光场才能使总的喇曼增益因子 $gI\Delta l$ 能足以克服腔内的损耗而获得振荡。输入共振正是提供了这样一种增强了的泵浦光场。

五、高阶和组合斯托克斯振荡

从上面的讨论已经知道,在球滴内部,由于强的泵浦场以及球体腔的高反馈,在一阶斯托克斯波长处很容易得到振荡。那么以一阶斯托克斯振荡作为泵浦可否得到二阶或高阶斯托克斯振荡呢?

一阶斯托克斯场与泵浦场相比,光场强度要弱,而且没有泵浦场那样集中的聚焦点。但是斯托克斯场也有它的特点:由于它发生在球体腔的本征模处,所以场的分布为矢量球谐函数,场的主要部分集中在球体界面附近。计算表明,对于序数低于15的本征模,振荡场极大值都处在离界面不到 $0.2a$ 的薄层之中,因而在这薄层之中,一阶斯托克斯场还是相当强的。而且一阶场与高阶场都具有球谐函数分布,从激发的角度来看,这是十分有利的。在液滴内部,泵浦场与一阶斯托克斯场一起还可经多波混合得到二阶场^[12]。以前的实验已经证明^[3]:由于相干喇曼混合过程,弱的受激振荡过程可以从强的振荡过程获得增益,所以一阶场的高增益可以传递到二阶场以及更高阶场,这就使得在一个很小的液滴中很高阶的喇曼振荡过程可以实现^[3,14]。

实验得到的酒精液滴的高阶及组合斯托克斯振荡输出谱如图6所示。对于水滴、苯滴以及其它液滴我们也得到了类似的结果。

酒精分子,有两个很强的喇曼活性模,即 882 cm^{-1} 及 2930 cm^{-1} 模。利用低色散的OMA系统(色散系统为配有300 lines/mm光栅的0.28 M的单色仪)从由532 nm光泵浦的酒精滴所得到的宽范围振荡输出谱中可以看到多个振荡,它们分别处于

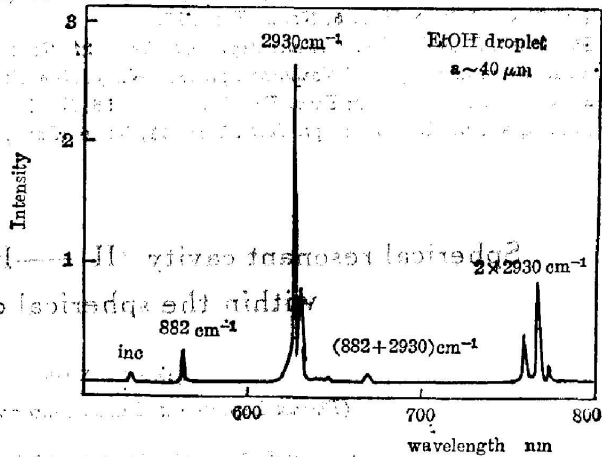


Fig. 6 High-order Stokes oscillation and combination Stokes oscillation output from the EtOH droplet

558 nm、630 nm、667 nm 和 773 nm。其中630 nm处的一组峰相应于 2930 cm^{-1} 模的一阶斯托克斯线(由于分辨率原因,其中的结构已无法分开),558 nm处的振荡峰相应于 882 cm^{-1} 模的一阶斯托克斯线。而773 nm峰为 2930 cm^{-1} 模的二阶斯托克斯输出,如果考虑到OMA接收探测器在长波长处灵敏度的下降,则输出的实际强度要比图6中所显示的为高。处于667 nm处的另一个峰则是一个组合斯托克斯振荡峰,即是 2930 cm^{-1} 模与 882 cm^{-1} 的组合激发峰,其频移为 3812 cm^{-1} 。从11 cm长的酒精池中利用具有同样的泵浦功率密度的激光束则没有观察到二阶及组合斯托克斯振荡。

如果采用不同液体的混合液来制备液滴,我们还可以得到各成分的喇曼模的组合激发。如对于 $\text{CCl}_4:\text{EtOH}(1:4)$ 混合液滴,我们已观察到 CCl_4 的 ν_1 模 459 cm^{-1} 和酒精的 2930 cm^{-1} 模的组合激发。

综合 532 nm 光束泵浦的各种液滴的喇曼振荡结果, 并且与液体池中的 SRS 相比较, 我们确实看到, 直径只有几十微米的液滴中的斯托克斯振荡过程十分有效, 这种高效激发系来自于球体腔中的高反馈与多波混合。

本文中的实验结果大多是作者在美国 Yale 大学进修期间完成的。在工作期间得到张国鼎(R. K. Chang)教授的热情指导和帮助以及 J. B. Snow 的友好合作, 在此表示谢意。

参 考 文 献

- [1] P. Chylek, J. T. Kiehl *et al.*; *Rhys. Rev.*, 1978, **A18**, No. 5 (Nov), 2229.
- [2] J. F. Owen, R. K. Chang *et al.*; *Opt. Lett.*, 1981, **6**, No. 11 (Nov), 540.
- [3] A. Ashkin, J. M. Dziedzic; *Appl. Opt.*, 1981, **20**, No. 10 (May), 1803.
- [4] J. B. Snow, S. X. Qian *et al.*; *Opt. Lett.*; 1985, **10**, No. 1 (Jan), 37.
- [5] S. X. Qian, J. B. Snow *et al.*; *Opt. Lett.* 1985, **10**, No. 10 (Oct), 499.
- [6] S. L. Shapiro, J. A. Giordmain *et al.*; *Phys. Rev. Lett.*, 1967, **19**, No. 19 (Nov), 1093.
- [7] E. Garmire; *Phys. Lett.*, 1965, **17**, No. 3 (Jul), 251.
- [8] C. F. Boren, D. R. Huffman; *Absorption and Scattering of Light by Small Particles*, (Wiley, New York, 1983).
- [9] H. M. Tzeng, K. F. Wall *et al.*; *Opt. Lett.*, 1984, **9**, No. 10 (Oct), 499.
- [10] 钱士雄; 《光学学报》, 1986, **6**, No. 2 (Feb), 97.
- [11] P. Chylek, J. D. Pendleton *et al.*; *Appl. Opt.*, 1985, **24**, No. 23 (Dec), 3940.
- [12] Y. R. Shen; *Principles of Nonlinear Optics*, (Wiley, New York, 1984).
- [13] S. X. Qian, R. K. Chang; *Phys. Rev. Lett.*, 1986, **56**, No. 9 (Mar), 926.
- [14] S. X. Qian, R. K. Chang; *Opt. Lett.*, 1986, **11**, No. 6 (Jun), 371.

Spherical resonant cavity (II) — Raman oscillation within the spherical cavity

QIAN SHIXIONG

(Physics Department, Fudan University, Shanghai)

(Received 31 July 1986; revised 27 November 1986)

Abstract

We make a comparison between the spherical resonant cavity and Fabry-Pérot cavity. The Raman oscillation within the spherical cavity which includes the oscillation spectra of water and ethanol droplets and the field distribution inside the droplets are discussed in detail. Both the output resonance and input resonance were observed in the experiment and are discussed. The high-order Stokes oscillation and the combination Stokes oscillation in the liquid droplets were also observed.

Key Words: spherical resonant cavity; Raman oscillation.