

喇曼脉冲在钡蒸气中传播的理论分析和数值计算

莫春松 王润文 楼祺洪 霍芸生

(中国科学院上海光机所)

Theoretical analysis and numerical calculation of Raman pulse propagating in barium vapour

Mo Chunshong, Wang Runwen, Lou Qihong, Huo Yunsheng

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

提要:从原子体系三能级近似出发,利用密度矩阵方程和 Maxwell 方程,导出一套描述光场和原子体系相互作用的方程。在考虑泵浦光随时间变化和初、末态的横向弛豫情况下,对方程组进行数值解,结果与实验相符合。

关键词:喇曼脉冲传播,钡蒸气

一、引言

关于喇曼光波形的讨论。较早的工作是由 Carman 等人完成的^[1],他们对不同的入射泵浦波形进行计算,得到如下结论:喇曼光相对于泵浦光有一时间延迟,脉冲前沿比后沿陡峭,脉宽变小。这些结论与实验观察相符合,但他们没有得到喇曼脉冲双峰乃至多峰的结果。其后, Tan-no 等人考虑了喇曼脉冲在介质中传播的相干瞬态效应^[2],他们从 Maxwell 方程和 Schrödinger 方程出发,得到 Raman-Bloch 方程,在不考虑纵向和横向弛豫($T_1 = T_2 = \infty$)情况下,研究了红宝石激光在 CS_2 中的受激喇曼散射。假定入射泵浦场是高斯线型的,发现随着泵浦强度的提高,喇曼光的波形会由单峰向双峰转化,并且调制度随着在喇曼介质中传播距离的增加

而加大,可达到 100%。Kachen 等人采用相同办法,研究 Nd:YAG 玻璃激光在高气压 H_2 中的受激喇曼散射^[3],忽略高阶斯托克斯光的产生,在计及横向弛豫和考虑喇曼介质中粒子低激发情况下,用数值解法,得到喇曼脉冲的波形及其在介质中的演化情况,他们的结果表明,相干传播的瞬态效应,会导致泵浦光和喇曼光之间的自感应增益和损耗调制,正是这种调制作用,引起泵浦光和喇曼光波形的时间起伏。最近,我们研究了 XeCl 准分子激光在钡蒸气中的受激喇曼散射,观察到喇曼脉冲波形的双峰结构。由于在这个过程中,初、末态的横向弛豫时间 T_2 与脉宽 τ_p 相比不能认为是无穷大,因此,有必要考虑横向弛豫的影响,使理论分析更能反映问题的实质。

我们从三能级近似出发,联立 Maxwell

收稿日期:1987年6月2日。

方程和密度矩阵方程。导出 Raman-Bloch 方程, 在考虑横向弛豫和泵浦光波形随时间起伏的情况下, 对方程求数值解, 结果与实验相符合

二、理论分析

首先考虑光场情况。采用平面波近似, 在国际单位制中, Maxwell 方程为:

$$\frac{\partial^2 E(z, t)}{\partial z^2} - \frac{n^2}{c^2} \frac{\partial^2 E(z, t)}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial^2 P(z, t)}{\partial t^2} \quad (1)$$

这里假定光沿 z 轴方向传播。

令:

$$E_i(z, t) = \varepsilon_i(z, t) \cos[\omega_i t - k_i z + \phi_i(z, t)] \quad (2)$$

$$P_i(z, t) = P_i^{(+)}(z, t) \cos[\omega_i t - k_i z + \phi_i(z, t)] + P_i^{(-)}(z, t) \times \sin[\omega_i t - k_i z + \phi_i(z, t)] \quad (\dot{i} = L, S) \quad (3)$$

$P_i^{(+)}$ 和 $P_i^{(-)}$ 分别是极化强度的同相和正交分量。

在采用慢变振幅、慢变位相近似下, 得到如下关于 ε_i 和 $P_i^{(-)}$ 、 ϕ_i 和 $P_i^{(+)}$ 的方程:

$$\frac{\partial \varepsilon_i(z, t)}{\partial z} + \frac{n_i}{c} \frac{\partial \varepsilon_i(z, t)}{\partial t} = -\frac{\omega_i c \mu_0}{2n_i} P_i^{(-)}(z, t) \quad (4a)$$

$$\varepsilon_i \left(\frac{\partial \phi_i(z, t)}{\partial z} + \frac{n_i}{c} \frac{\partial \phi_i(z, t)}{\partial t} \right) = -\frac{\omega_i c \mu_0}{2n_i} P_i^{(+)}(z, t) \quad (4b)$$

其次考虑原子体系。密度算符 $\hat{\rho}$ 的运动方程:

$$\frac{\partial \hat{\rho}}{\partial t} = -\frac{i}{\hbar} [\hat{H}, \hat{\rho}] \quad (5)$$

这里, $\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{H}_I$ 。 \hat{H}_0 是无微扰时体系的哈密顿算符, \hat{H}_I 是相互作用哈密顿算符。在电偶极近似下:

$$\hat{H}_I = -\hat{\mu} \cdot \hat{E} \quad (6)$$

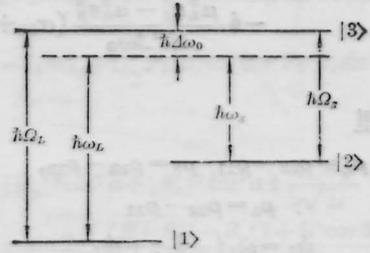


图1 喇曼散射中原子跃迁能级图

图1是喇曼散射中所涉及的原子跃迁能级图。

适当地选择初态 $|1\rangle$ 、末态 $|2\rangle$ 、中间态 $|3\rangle$ 的相因子, 使得:

$$\mu_{13} = \mu_{31} = \mu_L, \mu_{23} = \mu_{32} = \mu_S \quad (7a)$$

同时取:

$$\mu_{11} = \mu_{22} = \mu_{33} = 0 \quad (7b)$$

作如下变换:

$$\rho_{13} = \sigma_{13} e^{i\Omega_L t}, \rho_{23} = \sigma_{23} e^{i\Omega_S t}, \rho_{12} = \sigma_{12} e^{i\Omega_L t} \quad (8)$$

这里 Ω_L 和 Ω_S 分别是态 $|1\rangle$ 向态 $|3\rangle$ 、态 $|3\rangle$ 向态 $|2\rangle$ 跃迁的本征频率, 而 $\Omega_\lambda = \Omega_L - \Omega_S$ 。在 ε_i 、 ϕ_i 和 ρ_{mn} 均为慢变的假定下, 由(5)、(6)、(7a)、(7b)及(8), 得到如下一组方程:

$$\sigma_{13} + \sigma_{13}^* = \frac{\mu_L \varepsilon_L \rho_L}{2\hbar \Delta \omega_0} \cos \bar{\psi}_L - \frac{\mu_S \varepsilon_S}{2\hbar \Delta \omega_0} \times [(\sigma_{12} + \sigma_{12}^*) \cos \bar{\psi}_S + i(\sigma_{12} - \sigma_{12}^*) \sin \bar{\psi}_S] \quad (9a)$$

$$\sigma_{23} + \sigma_{23}^* = \frac{\mu_S \varepsilon_S \rho_S}{2\hbar \Delta \omega_0} \cos \bar{\psi}_S - \frac{\mu_L \varepsilon_L}{2\hbar \Delta \omega_0} \times [(\sigma_{12} + \sigma_{12}^*) \cos \bar{\psi}_L - i(\sigma_{12} - \sigma_{12}^*) \sin \bar{\psi}_L] \quad (9b)$$

$$\frac{d\rho_\lambda}{dt} = -\frac{\mu_S \mu_L \varepsilon_S \varepsilon_L}{2\hbar^2 \Delta \omega_0} \times [i(\sigma_{12} - \sigma_{12}^*) \cos \bar{\psi}_\lambda + (\sigma_{12} + \sigma_{12}^*) \sin \bar{\psi}_\lambda] \quad (9c)$$

$$\frac{d(\sigma_{12} + \sigma_{12}^*)}{dt} = \frac{\mu_S \mu_L \varepsilon_S \varepsilon_L \rho_\lambda}{2\hbar^2 \Delta \omega_0} \sin \bar{\psi}_\lambda - i \frac{\mu_L^2 \varepsilon_L^2 - \mu_S^2 \varepsilon_S^2}{4\hbar^2 \Delta \omega_0} \times (\sigma_{12} - \sigma_{12}^*) \quad (9d)$$

$$\frac{d(\sigma_{12} - \sigma_{12}^*)}{dt} = -i \frac{\mu_S \mu_L \varepsilon_S \varepsilon_L \rho_\lambda}{2\hbar^2 \Delta \omega_0} \cos \bar{\psi}_\lambda$$

$$-\frac{i}{4\hbar^2\Delta\omega_0}(\mu_L^2\varepsilon_L^2 - \mu_S^2\varepsilon_S^2)(\sigma_{12} + \sigma_{12}^*) \quad (9e)$$

这里

$$\rho_L = \rho_{33} - \rho_{11}, \quad \rho_S = \rho_{33} - \rho_{22},$$

$$\rho_\lambda = \rho_{22} - \rho_{11}$$

$$\psi_L = \omega_L t - k_L z + \phi_L,$$

$$\psi_S = \omega_S t - k_S z + \phi_S$$

$$\bar{\psi}_L = \psi_L - \Omega_L t, \quad \bar{\psi}_S = \psi_S - \Omega_S t,$$

$$\bar{\psi}_\lambda = \bar{\psi}_L - \bar{\psi}_S$$

$$\Delta\omega_0 = \omega_L - \Omega_L = \omega_S - \Omega_S$$

这组方程与 Tan-no 等人得到的方程^[2]有差别。通过如下方式定义变量 u_n 和 v_n ($n = \lambda, L, S$):

$$\sigma_{12} = (u_\lambda - i v_\lambda) e^{i\bar{\psi}_\lambda} / 2 \quad (10a)$$

$$\sigma_{13} = (u_L - i v_L) e^{i\bar{\psi}_L} / 2 \quad (10b)$$

$$\sigma_{23} = (u_S - i v_S) e^{i\bar{\psi}_S} / 2 \quad (10c)$$

u_n 和 v_n 分别对应着极化强度的同相和正交分量。由方程(9a)~(9e), 得:

$$\dot{\rho}_\lambda = -\alpha \varepsilon_S \varepsilon_L v_\lambda \quad (11a)$$

$$\dot{v}_\lambda = -\left(\dot{\bar{\psi}}_\lambda + \frac{\mu_L^2 \varepsilon_L^2 - \mu_S^2 \varepsilon_S^2}{4\hbar^2 \Delta\omega_0}\right) v_\lambda \quad (11b)$$

$$\dot{u}_\lambda = \left(\dot{\bar{\psi}}_\lambda + \frac{\mu_L^2 \varepsilon_L^2 - \mu_S^2 \varepsilon_S^2}{4\hbar^2 \Delta\omega_0}\right) u_\lambda + \alpha \varepsilon_S \varepsilon_L \rho_\lambda \quad (11c)$$

$$v_L = -\frac{\mu_S \varepsilon_S}{2\hbar \Delta\omega_0} v_\lambda \quad (11d)$$

$$v_S = \frac{\mu_L \varepsilon_L}{2\hbar \Delta\omega_0} v_\lambda \quad (11e)$$

这里

$$\alpha = \frac{\mu_S \mu_L}{2\hbar^2 \Delta\omega_0}$$

原子体系内部所有频率对极化强度的贡献为:

$$P = \langle N_0 T_r(\hat{\mu}\hat{\rho}) \rangle \quad (12)$$

这里, N_0 是喇曼介质中的粒子数密度, $\langle \dots \rangle$ 代表对频率求和。则:

$$\begin{aligned} P_L &= N_0 \langle \mu_{13} \rho_{31} + \mu_{31} \rho_{13} \rangle \\ &= N_0 \mu_L \langle \rho_{21} + \rho_{13} \rangle \\ &= N_0 \mu_L (\langle u_L \rangle \cos \psi_L + \langle v_L \rangle \sin \psi_L) \end{aligned} \quad (13a)$$

$$P_S = N_0 \langle \mu_{23} \rho_{32} + \mu_{32} \rho_{23} \rangle$$

$$\begin{aligned} &= N_0 \mu_S \langle \rho_{32} + \rho_{23} \rangle \\ &= N_0 \mu_S (\langle u_S \rangle \cos \psi_S + \langle v_S \rangle \sin \psi_S) \end{aligned} \quad (13b)$$

将(13a)、(13b)和(3)比较, 得到:

$$P_i^{(+)} = N_0 \mu_i \langle u_i \rangle, \quad P_i^{(-)} = N_0 \mu_i \langle v_i \rangle \quad (i = L, S)$$

利用(11d)、(11e), 把上面结果代入(4a), 就得到我们所关心的泵浦光和喇曼光振幅的方程:

$$\frac{\partial \varepsilon_L(z, t)}{\partial z} + \frac{n_L}{c} \frac{\partial \varepsilon_L(z, t)}{\partial t} = \kappa_L \omega_L \varepsilon_S \langle v_\lambda \rangle \quad (14a)$$

$$\frac{\partial \varepsilon_S(z, t)}{\partial z} + \frac{n_S}{c} \frac{\partial \varepsilon_S(z, t)}{\partial t} = -\kappa_S \omega_S \varepsilon_L \langle v_\lambda \rangle \quad (14b)$$

式中

$$\kappa_{L(S)} = \frac{N_0 \mu_0 c \mu_L \mu_S}{4\hbar \Delta\omega_0 n_{L(S)}}$$

在关于 ρ_λ , u_λ 和 v_λ 的方程中唯像地引入纵向弛豫时间 T_1 和横向弛豫时间 T_2 。考虑原子线型函数 $g(\omega) \sim \delta(\omega)$, $\delta(\omega)$ 是 Dirac δ 函数。由于 $g(\omega)$ 是对称函数, 所以, $(\mu_L^2 \varepsilon_L^2 - \mu_S^2 \varepsilon_S^2) / 4\hbar^2 \Delta\omega_0$ 可以忽略掉^[2]。由慢变位相假定, 可取 $\dot{\bar{\psi}}_\lambda = 0$ 。则得方程组:

$$\dot{\rho}_\lambda = -\alpha \varepsilon_S \varepsilon_L v_\lambda - (\rho_\lambda - \rho_\lambda^{eq}) / T_1 \quad (15a)$$

$$\dot{v}_\lambda = \alpha \varepsilon_S \varepsilon_L \rho_\lambda - v_\lambda / T_2 \quad (15b)$$

联立方程(14a)、(14b)、(15a)和(15b), 就得到我们讨论问题的出发点。

三、Raman-Bloch 方程的解

在我们的实验中, 每个钡原子被激发至末态的几率约为 2.3×10^{-5} , 所以 ρ_λ 近似保持热平衡时的值 ρ_λ^{eq} 。取 $n_L = n_S = n = 1.00$, 并作坐标变换:

$$z = z, \quad \tau = t - \frac{nz}{c} \quad (16)$$

由(14a)~(15b), 得:

$$\frac{\partial \varepsilon_L(z, \tau)}{\partial z} = \kappa_L \omega_L \varepsilon_S(z, \tau) v_\lambda(z, \tau) \quad (17a)$$

$$\frac{\partial \varepsilon_S(z, \tau)}{\partial z} = -\kappa_S \omega_S \varepsilon_L(z, \tau) v_\lambda(z, \tau) \quad (17b)$$

$$v_x(z, \tau) = \alpha \rho_x^{eq} \int_{-\infty}^{\tau} \exp[(t' - \tau)T_2^{-1}] \times \varepsilon_L(z, t') \varepsilon_S(z, t') dt' \quad (17c)$$

方程(17a)~(17c)是与我们的实验情况相对应的 Raman-Bloch 方程, 对它们求数值解, 就可以研究喇曼脉冲在钡蒸气中传播的演化情况。

取电阻炉温度的典型值: $T = 1000^\circ\text{C}$ 。方程中各参量的值如下: $\mu_L = 1.263 \times 10^{-29} \text{C}\cdot\text{m}$, $\mu_S = 0.689 \times 10^{-29} \text{C}\cdot\text{m}$, $N_0 = 4.540 \times 10^{22} \text{m}^{-3}$, $\Delta\omega_0 = -79 \text{cm}^{-1}$, $T_2 = 0.116 \text{ns}$, $\rho_x^{eq} \approx -1.000$ 。初始泵浦场和初始斯托克斯噪声场的关系为: $\varepsilon_L(0, \tau) = e^{18} \varepsilon_S(0, \tau)$ 。

图 2 中, (a) 给出实验中拍摄到的入射泵浦光波形和计算上为方便起见而用两个高斯函数模拟的简化入射泵浦光波形。(b) 给出实验上拍摄到的出射喇曼光波形和通过计算得到的出射喇曼光波形。

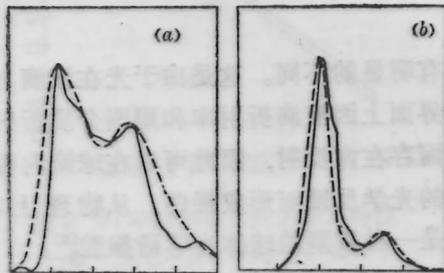


图 2 (a) 泵浦光的波形; (b) 喇曼光的波形。实线: 实验值; 虚线: 计算值。时间标度: 20ns/div

从喇曼光的波形, 两个峰的间隔和调制度来看, 理论计算和实验结果基本相符。

为了进一步证实实验中喇曼脉冲的波形起伏主要是由泵浦脉冲的波形起伏决定, 我们还计算了输入泵浦脉冲由三个峰叠加而成的情况, 如图 3。结果与理论预言相符合。

这样的结果, 是与我们的实验情况相对应的。首先, 入射泵浦场不强。理论分析表明, 在相同条件下, 泵浦场的强度越大, 非线性正交极化强度越大, 将会使喇曼脉冲显示出时间结构。这一点, Tan-no 等人进行了

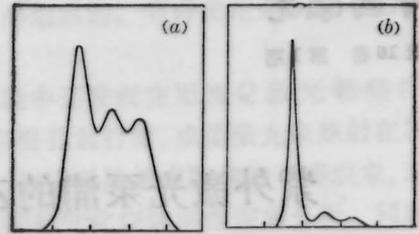


图 3 (a) 泵浦光的波形(理论模拟); (b) 喇曼光的波形(数值计算)。时间标度: 20ns/div

细致的计算^[2]。其次, 喇曼介质粒子数密度较低。Tan-no 等人研究 CS_2 中的受激喇曼散射, 粒子数密度 $N_0 \sim 10^{28} \text{m}^{-3}$, Kachen 等研究高压氢气 ($\sim 30 \text{atm}$) 的受激喇曼散射, 他们的结果都表明, 在入射泵浦光波形是高斯线型的情况下, 喇曼光脉冲会出现多峰情况。而我们的研究对象是蒸气压仅为 6 Torr 的钡蒸气, 光脉冲在这种稀薄介质中传播, 不会引起强烈的增益和损耗调制。我们有理由推测, 在高蒸气压情况下, 喇曼脉冲会出现明显的多峰调制现象。第三, 横向弛豫时间 T_2 与泵浦光脉宽 ($\tau_p \sim 40 \text{ns}$) 相比较小, 这种介于稳态和瞬态的情形, 相干传播的瞬态效应不显著。具体体现就是喇曼光基本上跟随泵浦光而变, 不会出现明显的峰的调制作用。

根据实验观察和理论分析, 可以看出高粒子数密度和长横向弛豫时间有利于喇曼脉冲多峰现象的产生。但这两者往往是不能同时达到的, 粒子数密度的增加, 必然会引起横向弛豫时间减少, 因此, 必须对这两者进行适当的选择, 才能得多峰结果。

四、讨 论

从前面的分析和计算我们看到, 横向弛豫时间 T_2 对喇曼光波形的形成有重要的影响。

作者曾研究过受激喇曼散射中的合作效应, 观察到喇曼光波形的多峰结构, 在理论处

(下转第 15 页)

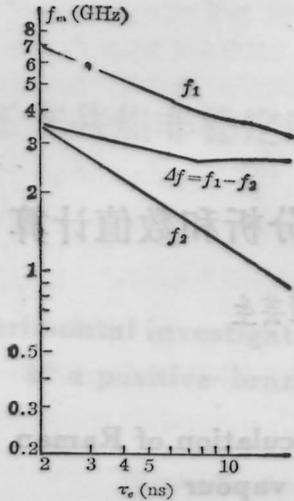


图8 非对称振荡频率 Δ 和 τ_c 的关系
 $I_{DC}=1.2I_{th}$, $I_{RF}=I_{th}$

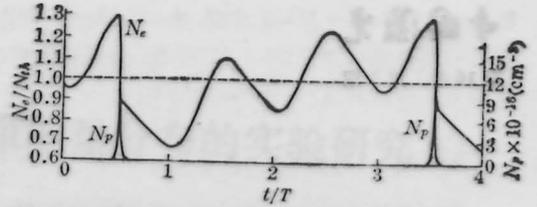


图9 三分频亚谐波激光脉冲振荡
 $\tau_c=2\text{ns}$, $\tau_p=10\text{ps}$, $\Delta N_{th}=5 \times 10^{11}$, $\xi=0.8$,
 $B=0$, $I_{DC}=I_{th}$, $I_{RF}=2I_{th}$, $f_m=800\text{MHz}$

参 考 文 献

- 1 Thomas L. Paoli, *IEEE J. Quant. Electr.*, **QE-17**, 675~680(1981)
- 2 H. Kawaguchi and K. Otsuka, *Electr. Lett.*, **19**, 668~669(1983)
- 3 J. P. Van der Ziel and R. A. Logan, *IEEE J. Quant. Electr.*, **QE-18**, 1340~1350(1982)
- 4 H. Kressel et al., *Semiconductor Lasers and Hetero-junction LEDs*, (Academic Press), 1977

(上接第6页)

3.4 脉宽与输出功率

用强流管接收, 宽带存储示波器观察, 拍得的输出光波形和泵浦波形如图8所示。两者半极大全宽度相差不大, 约为10ns。然而, 输出光脉冲的前沿比泵浦光的前沿平坦, 而



图8 输出光(上)和泵浦光(下)的波形照片

且其峰值稍有后移, 因为腔内损耗所致。

由实测数据, 算出最大峰值功率为0.5MW, 输出功率密度为52MW/cm²。

张邦星同志参加了本实验的前期工作, 本室晶体生长组提供了优质晶体, 许宝健等同志给予高质量加工, 邹成就同志对本文提出了宝贵意见, 在此一并表示感谢。

参 考 文 献

- 1 P. F. Moulton, *J. Opt. Soc. Am.*, **B3**(1), 125(1986)
- 2 A. Sanchez et al., *Opt. Lett.*, **11**(6), 363(1986)
- 3 P. Lacovara et al., *Opt. Lett.*, **10**(6), 273(1985)

(上接第19页)

理时, 近似地取 T_2 等于无穷大, 由输入高斯泵浦波形得到输出的多峰喇曼波形, 能近似解释铝蒸气的实验结果。但在Ba是蒸气实验中, T_2 约为0.16ns, 脉宽 τ_p 等于40ns, T_2 与 τ_p 相比是有限的, 不能认为 T_2 无穷大, 对于这种准稳态情形, 式(15b)中的弛豫项 v_2/T_2 发挥作用, 这时就应该考虑 T_2 的作用。我们计及 T_2 的影响, 计算结果与实验观察基本

相同。

本工作的实验得到魏运荣、董景星、丁爱臻等同志的帮助, 作者在此表示衷心感谢。

参 考 文 献

- 1 R. L. Carman et al., *Phys. Rev.*, **2**, 60(1970)
- 2 N. Tan-no et al., *Phys. Rev.*, **12**, 159(1975)
- 3 G. I. Kachen, W. H. Lowdermilk, *Phys. Rev.*, **14**, 1472(1976)