

基于 D₂O 的光抽运腔式太赫兹波激光谱线竞争

梁平元^{1,2} 孟 猛² 罗锡璋²

(¹吉首大学信息科学与工程学院, 湖南 吉首 416000)
(²中山大学信息科学与技术学院, 广东 广州 510275)

摘要 从半经典密度矩阵理论出发,建立了光抽运太赫兹波谱线竞争的双三能级分子系统模型,理论推导了抽运信号吸收系数以及太赫兹波信号增益系数的数学表达式,采用迭代法数值计算了 CO₂ 激光-9P(32)抽运重水(D₂O)气体分子腔式太赫兹激光 66 μm 和 116 μm 两条谱线之间的竞争。给出了抽运功率、工作气压及激光腔长等工作条件下谱线竞争的一般规律。

关键词 超快光学;太赫兹激光;密度矩阵理论;谱线竞争;光抽运;重水

中图分类号 O439 **文献标识码** A **doi**: 10.3788/CJL201239.0511001

Laser Line Competition in Optically Pumped D₂O Cavity Terahertz Wave

Liang Pingyuan^{1,2} Meng Meng² Luo Xizhang²

(¹School of Information Science and Engineering, Jishou University, Jishou, Hunan 416000, China)
(²School of Information Science and Technology, Sun Yat-sen University, Guangzhou, Guangdong 510275, China)

Abstract Based on the theory of semi-classical density matrix, a model of double three-energy-level system for terahertz laser line competition is built. The mathematical expressions of absorption coefficient for pump signal and gain coefficients for terahertz laser signals are deduced, and the competitions between 66 μm and 116 μm spectral lines in CO₂-9P(32) optically pumped D₂O cavity terahertz laser are calculated numerically by means of iteration. The general rules for laser line competition under different operating conditions (including pump power, operating gas pressure and length of cavity) are summarized.

Key words ultrafast optics; terahertz laser; density matrix theory; laser line competition; optically pumping; D₂O

OCIS codes 140.3410; 140.3470; 300.6170; 300.6360; 300.6495

1 引 言

随着太赫兹波(波长 30~3000 μm 之间)在物理、化学、生物、环境和无线通信等方面应用的深入,太赫兹波激光辐射源的研究显得越来越重要。大功率脉冲横向激励大气压(TEA)CO₂ 激光器为光抽运太赫兹波激光的产生提供了理想的大功率抽运源^[1],此外,利用光抽运激光中的受激拉曼过程,可以产生可调谐太赫兹波激光,其有可能覆盖 40~1250 μm 准连续的波长范围,如用 200 mJ 的 CO₂ 激

光抽运 CH₃F 可以产生 1~500 μJ/200 ns 的太赫兹波激光^[2]。进入 20 世纪 90 年代,太赫兹波激光的研究趋势主要表现在探索光抽运激光新理论、辐射特性、提高光束质量及测量技术和探索新现象几个方面^[3,4]。为了研究新现象,Schatz^[5]用 2026.5 kPa 的 CO₂ 激光器光抽运一些甲基卤化物、重水(D₂O)和氨分子(NH₃),得到了约 1000 条激光谱线,波长范围从毫米区域一直到 40 μm。文献[6]用 32 J 的 TEA CO₂ 激光抽运 NH₃ 产生了 204 mJ,波长为 151.5 μm 的太

收稿日期: 2011-11-14; **收到修改稿日期**: 2012-02-06

基金项目: 国家自然科学基金(61173018)、湖南省教育厅优秀青年项目(11B102)和湖南省自然科学基金(11JJ6061)资助课题。

作者简介: 梁平元(1972—),男,副教授,博士研究生,主要从事光通信技术与无线传感器网络等方面的研究。

E-mail: Liangpingyuan123@163.com

导师简介: 罗锡璋(1946—),男,教授,博士生导师,主要从事亚毫米波技术与光通信等方面的研究。

E-mail: isslxz@mail.sysu.edu.cn

赫兹辐射高能脉冲,且其光子转换效率可达 18%。

D₂O 是通过光学抽运产生相干太赫兹波的主要工作物质之一。D₂O 分子自身的结构决定了它可以产生丰富的太赫兹谱线。关于光抽运 D₂O 分子太赫兹激光的研究,最初人们致力于改进激光抽运源,发现更多、更强的激光谱线^[7~10]。随后,研究发现在相同抽运线、不同的工作条件下,能产生的谱线和它们之间的强弱关系都有所变化,也就是说不同谱线之间存在竞争。G. Dodel 等^[11]用 TEA-CO₂ 激光-9P(32)抽运 6 m 长的 D₂O 分子太赫兹波激光器,观察到 50、66、83、116 μm 的太赫兹波谱线,但该课题组及之后的研究均未对其产生机制,尤其是谱线竞争的规律做出深入的研究。在此基础上,本文提出了一种光抽运太赫兹激光介质双三能级模型,研究了 TEA-CO₂ 激光-9P(32)抽运腔式 D₂O 分子太赫兹波激光 66 μm 和 116 μm 两条谱线的竞争情况,总结了不同参数条件下谱线竞争的一般规律。这一工作对深入了解谱线竞争机制,筛选太赫兹波激光谱线有一定的参考价值。

2 光抽运太赫兹激光谱线竞争的双三能级近似分析

2.1 光抽运太赫兹波谱线竞争的双三能级模型

为了研究光抽运太赫兹激光的谱线竞争,建立了一种新型的双三能级系统模型,如图 1 所示。两组相对独立的三能级对应着两条不同的输出谱线,两组能级共用相同的抽运功率,但因为二者相对独立并且两组能级的参数也各不相同,在分析的过程中,单独考虑每一组三能级所产生的太赫兹波信号增益系数,而对抽运增益则作迭加处理。

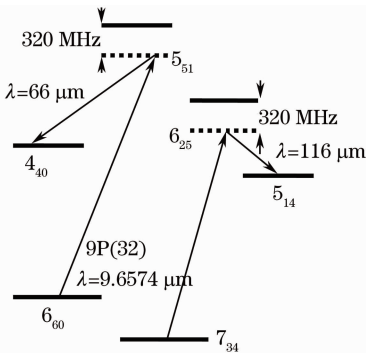


图 1 太赫兹激光谱线竞争的双三能级模型

Fig. 1 Model of double three-energy-level for terahertz laser line competition

采用抽运源为 CO₂ 激光器 9P(32)谱线,波数为 $\omega_p = 1035.7633 \text{ cm}^{-1}$ (9.6574156 μm)^[12],太赫

兹激光介质为 D₂O 气体分子,涉及到的两组三能级分别为^[13]

$$\begin{cases} E_{11}(6_{60}) = 582.40899 \text{ cm}^{-1} \\ E_{12}(4_{40}) = 1466.15939 \text{ cm}^{-1} \rightarrow 66 \mu\text{m}, \\ E_{13}(5_{51}) = 1617.84341 \text{ cm}^{-1} \end{cases} \quad (1)$$

$$\begin{cases} E_{21}(7_{34}) = 436.06027 \text{ cm}^{-1} \\ E_{22}(5_{14}) = 1385.70087 \text{ cm}^{-1} \rightarrow 116 \mu\text{m}, \\ E_{23}(6_{25}) = 1471.55201 \text{ cm}^{-1} \end{cases} \quad (2)$$

式中(6₆₀、4₄₀、5₅₁)、(7₃₄、5₁₄、6₂₅)分别表示两组三能级对应的量子状态数 $J_{(k-1)(k+1)}$ 。

对于理想气体,满足理想气体状态方程: $PV = NKT$,单位体积的粒子数 N 与气体压强 P 的关系为 $N = P/(KT)$ 。

实际参与激光过程的三能级系统的分子百分数为

$$f = \frac{\sum_{i=1}^3 \exp[-E_i/(KT)]}{\sum_{i=1}^{\infty} \exp[-E_i/(KT)]} \quad (3)$$

据此,可推导出单位体积内参与激光过程的有效分子数密度 N_v 为

$$N_v = f \cdot \frac{N}{V} = f \cdot \frac{P}{KT} \quad (4)$$

考虑到 D₂O 分子的能级数据,不难求得 $T = 300 \text{ K}$ 温度下,66 μm 三能级系统中参与光抽运激光过程的有效分子数密度为 $N_v = 1.37 \times 10^{21} P$,对 116 μm 三能级系统 $N_v = 2.76 \times 10^{21} P$ ^[10]。对于 D₂O 气体分子可以近似认为纵向弛豫时间与所有的横向弛豫时间相等^[14],即 $\tau_{12} = \tau_{21} = \tau_{13} = \tau_{23} = T_a = T_b = 2.5 \times 10^{-8} / P$ 。根据普朗克黑体辐射公式可计算得到初始光强 $I_{s0} = 2.0 \times 10^{-13} \text{ W/cm}^2$,这里的初始光强指噪声^[15]。初始太赫兹波信号在激活介质中不断得到放大,最后得到大功率输出激光信号。

2.2 太赫兹波信号的增益系数

根据电磁场理论,考虑跃迁引起的电极化强度,且综合考虑双三能级模型和两组三能级的参数,利用半经典密度矩阵方程可求解出激光气体介质对抽运信号的吸收系数 G_p 和 66 μm 及 116 μm 两太赫兹波信号的增益系数 G_{s1} 、 G_{s2} 为

$$\begin{cases} G_{s1} = -\frac{2N_v \mu_s^2 T_a}{\epsilon_0 \eta c \hbar B_{s1}} \text{Im}(P_{321}) - \alpha_{s1} \\ G_{s2} = -\frac{2N_v \mu_s^2 T_a}{\epsilon_0 \eta c \hbar B_{s2}} \text{Im}(P_{322}) - \alpha_{s2} \\ G_p = -\frac{2N_v \mu_p^2 T_a}{\epsilon_0 \eta c \hbar B_p} \text{Im}(P_{131} + P_{132}) - \alpha_p \end{cases} \quad (5)$$

式中 μ_s 和 μ_p 分别为太赫兹波信号和抽运信号的跃迁复电偶极距, ϵ_0 为真空中的介电常数, $\eta = (\epsilon/\epsilon_0)^{(1/2)}$ 为 D₂O 蒸气的折射率, $h = h/(2\pi)$ 为普朗克常数, α_{s1} 、 α_{s2} 和 α_p 分别为修正数(由各种损耗引起)。

3 数值计算模型

在计算中,将太赫兹激光腔平均分成 M 段,如图 2 所示,从第一段出发,计算第一段输出的 $I_{s,1}$ 和 $I_{p,1}$,并将其作为第二段的输入,如此下去,将第 k 段输出作为第 $(k+1)$ 段的初始输入信号,即

$$I_{s,k+1} = I_s \exp(G_{s,k+1} \Delta z), \quad (6)$$

$$I_{p,k+1} = I_p \exp(G_{p,k+1} \Delta z). \quad (7)$$

结合(5)式,可以数值迭代计算出样品管内各点介质对抽运光强的吸收系数和太赫兹波信号的增益系数、各点的抽运信号强度和太赫兹波信号光强及频谱特性。对于腔式激光器应考虑谐振腔的反馈特性和谐振特性,其腔输入、输出端的反馈作用可使太赫兹波信号在腔中来回放大多次,直到信号场达到

稳定,最终输出稳定的太赫兹波激光。

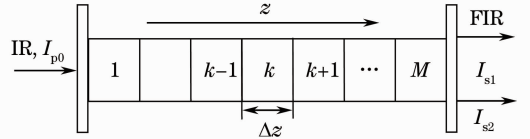


图 2 迭代数值计算

Fig. 2 Numerical calculation by means of iteration

4 光抽运腔式太赫兹波激光谱线竞争

4.1 抽运功率对光抽运腔式太赫兹波激光谱线竞争的影响

在激光腔长 $L=1$ m,工作气压 $P=10 \times 133.33$ Pa 时,腔体由金属网栅构成,对太赫兹波反射系数为 0.1,入射端反射系数为 0.8,金属网栅对抽运信号(中红外)的反射可忽略不计的条件下,计算由 CO₂ 激光-9P(32) 抽运 D₂O 腔式太赫兹波激光产生的 66 μ m 和 116 μ m 两条谱线的竞争情况,其计算结果如图 3 所示。

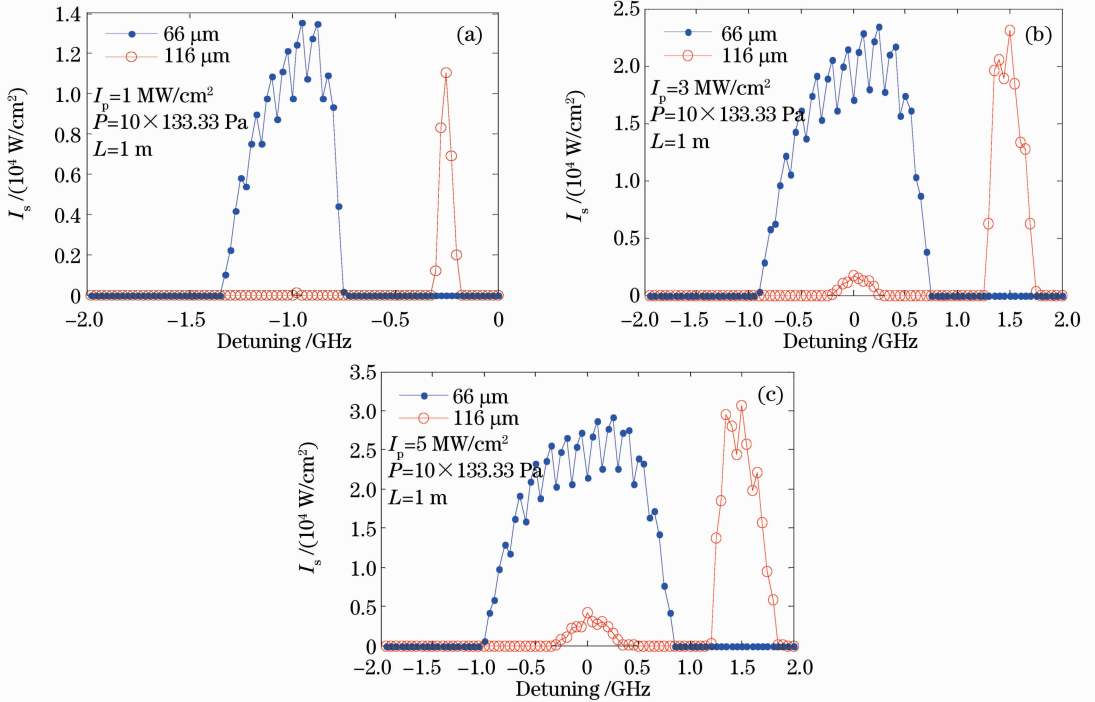


图 3 不同抽运功率下的谱线竞争

Fig. 3 Laser line competition under different pump powers

比较图 3 的 3 个图可知,在各种抽运功率情况下,66 μ m 谱线在竞争中占优。随着抽运功率的增加,116 μ m 谱线输出的增幅较大,可以预见,随抽运功率的进一步增加,116 μ m 谱线的输出将会进一步接近 66 μ m 谱线。

在光抽运腔式激光器中,66 μ m 谱线和 116 μ m

谱线的频谱特性曲线都很宽,66 μ m 谱线的 AC-Stack 双峰被填平,而 116 μ m 谱线还呈现 AC-Stack 双峰结构。此外,谱线均呈现出多尖峰结构,这种多尖峰结构,对应着谱线的多纵模结构。这是谐振腔对太赫兹波激光信号的选模作用的结果。对任意法布里-珀罗(F-P)激光谐振腔,其相邻的两个纵模间隔为

$$\Delta\nu = \nu_{q+1} - \nu_q = \frac{c}{2L}, \quad (8)$$

取 $L=1$ m, 可算得 $\Delta\nu$ 为 150 MHz, 在图 3(a)、(b)、(c)各图中, 各相邻尖峰的间距也约为 150 MHz, 两者相符。

4.2 工作气压对光抽运腔式太赫兹波激光谱线竞争特性的影响

在功率 $I_p=3$ MW/cm², $L=1$ m 时, 工作气压分

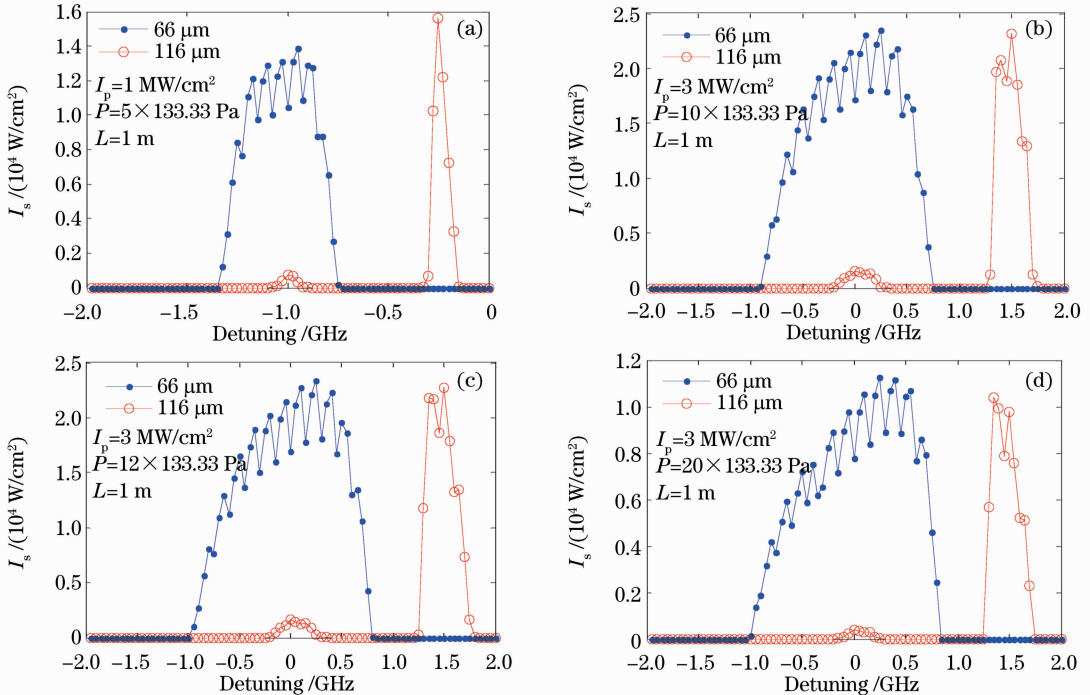


图 4 不同工作气压下的谱线竞争

Fig. 4 Laser line competition under different operation gas pressures

4.3 激光腔长对光抽运腔式太赫兹波激光谱线竞争的影响

激光腔长对谱线竞争的影响如图 5 所示, 通过比较可以看出: 66 μm 谱线在竞争中占优势; 通过频谱可以出现, 随着腔长的增加, 尖峰数目也增加, 这是因为腔长与纵模间隔成反比, 也就是纵模数与激光腔长成正比。尖峰数目随腔长增加而增加, 进一步说明频谱中的多尖峰结构对应着多纵模结构。

5 结 论

综合以上分析, 可以得到以下结论:

1) TEA CO₂ 激光-9P(32)抽运 D₂O 分子腔式太赫兹波激光 66 μm 和 116 μm 两条谱线之间存在着竞争。

2) 在不同参数(抽运功率、工作气压、激光腔长)条件下, 66 μm 谱线在竞争中占明显的优势, 其输出强于 116 μm 谱线的输出; 随着抽运功率的增

别取 5 × 133.33 Pa, 10 × 133.33 Pa, 12 × 133.33 Pa 及 20 × 133.33 Pa。这 4 种条件下两条谱线的竞争情况如图 4 所示。由图可知, 66 μm 谱线在竞争中占优势, 对应的最佳气压与 116 μm 谱线的最佳气压较为接近(但略高于后者)。随着工作气压的升高, 两谱线的谱线宽度都增加, 谱线中包含的纵模数(尖峰数目)也都增加而纵模间距保持不变。

大, 116 μm 谱线的输出会慢慢接近 66 μm 谱线。

3) 66 μm 谱线的 AC-Stack 双峰消失, 成为很宽的谱带, 而 116 μm 谱线仍然是 AC-Stack 双峰结构; 两谱线均呈现出多尖峰结构, 这些多尖峰结构对应着谱线的多纵模结构。

4) 随着工作气压的升高, 两谱线的宽度会增加, 谱线中的纵模数(尖峰数目)也会增加, 而纵模间距保持不变。

5) 随着激光腔长的增加, 两谱线的纵模数会增加。

参 考 文 献

- 1 E. Micheal, J. Stutzki. A compact FIR ring laser with open resonator and variable output coupling[J]. *Int. J. Infrared Milliwave*, 1996, **17**(8): 1301~1319
- 2 P. T. Lang. Generation of tunable high power far-infrared radiation by stimulated Raman scattering in gaseous methyl halides[J]. *Infrared Phys.*, 1992, **33**(4): 237~262
- 3 Huang Zhen, Yu Bin, Zhao Guozhong. The THz emission

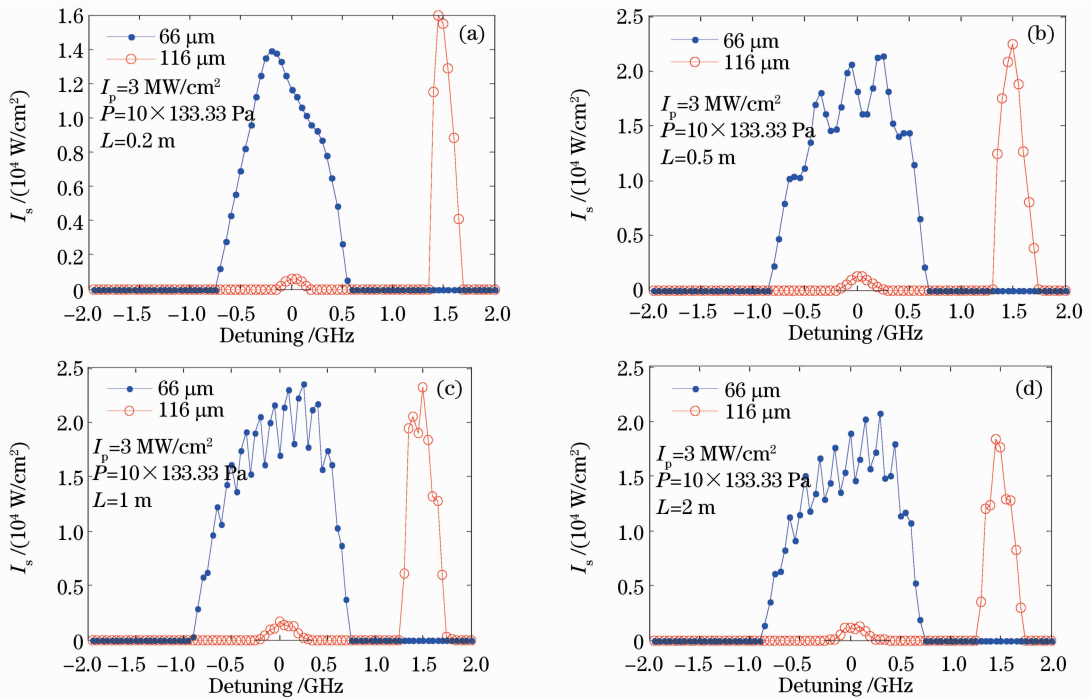


图 5 不同腔长时的谱线竞争

Fig. 5 Laser line competition under different lengths of cavity

properties of small-aperture photoconductive antenna[J]. *Chinese J. Lasers*, 2010, **37**(1): 110~114

黄振, 于斌, 赵国忠. 小孔径光电导天线产生太赫兹波的辐射特性[J]. *中国激光*, 2010, **37**(1): 110~114

4 Li Zhongyang, Yao Jianquan, Xu Degang *et al.*. Experimental investigation of high-power tunable THz-wave parametric oscillator based upon MgO:LiNbO₃ crystal[J]. *Chinese J. Lasers*, 2011, **38**(4): 0411002

李忠洋, 姚建铨, 徐德刚等. 钽酸锂晶体中参量振荡产生高功率可调谐太赫兹波实验研究[J]. *中国激光*, 2011, **38**(4): 0411002

5 W. Schatz. Generation of tunable far-infrared radiation by optical-pumping molecular gas-lasers [J]. *Infrared Phys. Technol.*, 1995, **36**(1): 387~393

6 Zhixian Jiu, Duluo Zuo, Liang Miao *et al.*. An efficient high-energy pulsed NH₃ terahertz laser[J]. *J. Infrared Milli Terahz Waves*, 2010, **31**(12): 1422~1426

7 N. Ioli, A. Moretti, D. Pereira *et al.*. Observation and assignment of D₂O FIR laser lines optically pumped by a waveguide CO₂ laser[J]. *IEEE J. Quantum Electron.*, 1989, **25**(8): 1884~1890

8 He Zhihong, Yao Jianquan, Shi Huafeng *et al.*. Semiclassical theory of optically pumped D₂O gas tera-Hz laser [J]. *Acta Physica Sinica* 2007, **56**(10): 5802~5807

何志红, 姚建铨, 时华锋等. 光泵重水气体产生 THz 激光的半经典理论分析[J]. *物理学报*, 2007, **56**(10): 5802~5807

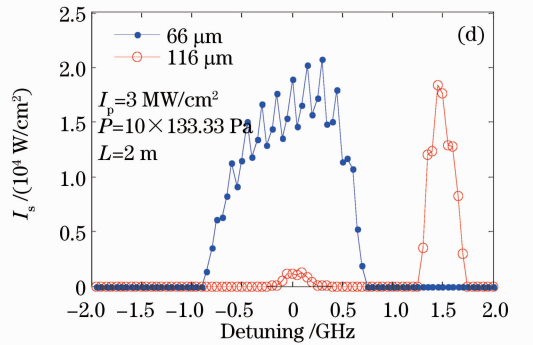
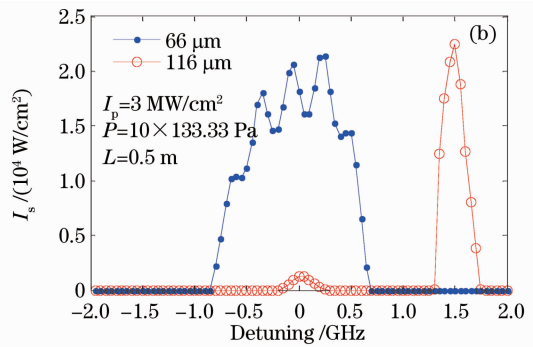


图 5 不同腔长时的谱线竞争

Fig. 5 Laser line competition under different lengths of cavity

9 He Zhihong, Yao Jianquan, Ren Xia *et al.*. Experimental and theoretical research on a compact superradiant optically pumped D₂O gas terahertz laser[J]. *J. Optoelectronics • Laser*, 2008, **19**(1): 34~37

何志红, 姚建铨, 任侠等. 紧凑型超辐射重水气体 THz 激光器的研制[J]. *光子·激光*, 2008, **19**(1): 34~37

10 He Zhihong, Yao Jianquan, Shi Huafeng *et al.*. Effect of pump laser intensity on optically pumped D₂O gas terahertz laser[J]. *Acta Physica Sinica*, 2007, **56**(11): 6451~6456

何志红, 姚建铨, 时华锋等. 抽运光强度对光学抽运重水气体产生 THz 激光的影响分析[J]. *物理学报*, 2007, **56**(11): 6451~6456

11 G. Dodel, N. G. Douglas. Investigation of D₂O laser emission at 50, 66, 83, 111, and 116 microns [J]. *IEEE J. Quantum Electron.*, 1982, **QE-18**(8): 1294~1301

12 R. Bock, W. English, K. Gurs. Table of Laser Lines in Gases and Vapors[M]. New York: Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 1976

13 G. Mellau, S. N. Mikhailenko, E. N. Starikova *et al.*. Rotational levels of the (000) and (010) states of D₂O from hot emission spectra in the 320~860 cm⁻¹ region [J]. *J. Mol. Spectrosc.*, 2004, **224**: 32~60

14 I. Mukhopadhyay, R. M. Lees, J. W. C. Johns. Torsional refilling transitions in TEA-CO₂: pumped CH₃OH FIR lasers with associated high resolution FIR spectra[J]. *Int. J. Infrared Milli. wave*, 1987, **8**(11): 1471~1482

15 B. C. David. High Intensity Laser Pumping of Molecular Gas Lasers[D]. Boston: Massachusetts Institute of Technology, 1981