

# 四能级系统中的双光子过程

林贻堃 官 蒂

(中山大学亚毫米波研究室)

## 提 要

光泵远红外激光一般只能提供分立的频谱,这一特点使它的应用受到一定的限制。1977年以来,不少学者对如何进行光泵远红外激光的频率调谐做了许多工作。由于分子的远红外激光跃迁过程是在多能级系统中进行的,所以理论计算相当繁琐,不容易得到比较精确的结果。我们应用图论方法研究了四能级系统的双光子过程。结果表明,通过连续地改变泵的频率,有可能对远红外激光频率进行调谐。频率调谐范围约等于两对远红外跃迁频率之差。本文给出了调谐曲线以及增益系数与泵频率失谐量之间的关系曲线。

## 一、引 言

光泵亚毫米波激光,从1970年T. Y. Chang获得成功以来<sup>[1]</sup>,国际上许多学者应用各种不同工作物质进行了大量工作,已在1~250 mm范围内成功地得到几千条受激发射谱线<sup>[2~5]</sup>。但到目前为止,光泵亚毫米波激光器的输出频率都是分立的和不可调谐的,这就使得许多应用受到一定的限制。如果能够解决这个问题,则可使光泵亚毫米波激光的用途更加宽广,特别是能为远红外-亚毫米波波谱研究和同位素分离等工作,提供较好条件。1977年以来不少学者在这方面进行了探索<sup>[6~12]</sup>,取得了一些成果。S. J. Petuchowski和H. R. Fetterman等人<sup>[11,12]</sup>根据受激喇曼辐射的光泵频率与喇曼辐射频率之间的关系,通过改变CO<sub>2</sub>激光频率在小范围内作线性变化。R. J. Temkin等人<sup>[10]</sup>1979年对四能级系统进行了理论分析,但是由于数学计算繁琐,在计算过程中作了一些简化假设,从而使结果不够准确,甚至有些结果由于计算简化而表现不出。T. A. DeTemple和H. K. Chung等人把信号流图方法推广到量子电子学的理论计算中,在简化多光子过程的理论计算方面获得了成功<sup>[13~17]</sup>。本文应用信号流图方法对四能级系统的双光子过程进行理论研究。

## 二、四能级系统中的双光子过程

考虑四能级系统的能级结构与跃迁过程,图1中能级1、2和3、4是在两个不同振动态中的两对转动能级。如果把能级1、2、3看作是一组三能级系统,则它在泵频率 $\omega_p$ 作用下,将产生频率为 $\omega_s$ 的受激喇曼辐射,同样把能级2、3、4看作是另一组三能级系统,它在泵频率的作用下,也可以产生受激喇曼辐射,其频率与前者不同。当 $\omega_p = \omega_p$ 时,能级1、3跃迁接近共振吸收,而能级2、4跃迁则距共振吸收较远,因而这时远红外发射频率靠近

收稿日期: 1981年6月22日

$(E_2 - E_1)/\hbar$ 。现在如果令泵的频率增加, 这样  $\omega_p > \omega_p$  对 1, 3 能级距共振较远, 而  $\omega_p \simeq \omega_p$  对 2, 4 能级则接近共振, 这时远红外发射频率就靠近  $(E_4 - E_3)/\hbar$ 。这样两对三能级系统发射的信号频率互相补充, 就有可能在一定的频率范围内对远红外激光进行调谐, 这个范围将比三能级系统要大。这种机构类似于无线电技术中的参差调谐作用。

大量具有四能级的分子, 其运动规律服从密度矩阵方程:

$$i\hbar \frac{\partial \rho_{jj}}{\partial t} = [H', \rho]_{jj} + \frac{i\hbar}{T_1} (\rho_{jj}^e - \rho_{jj}), \quad (1)$$

$$i\hbar \frac{\partial \rho_{ij}}{\partial t} = \hbar \omega_{ij} \rho_{ij} + [H', \rho]_{ij} - \frac{i\hbar}{\tau_{ij}} \rho_{ij}, \quad (2)$$

其中  $\rho_{ij}$  为密度矩阵元,  $i, j=1, 2, 3, 4$ ,  $\rho_{jj}^e$  为平衡态时的  $\rho_{jj}$  值,  $\mu$  为电偶极矩,  $E$  为电场强度,  $H' = -\mu \cdot E$ ,  $\omega_{ij} = (E_i - E_j)/\hbar$ ,  $E_i, E_j$  为能级值,  $T_1$  和  $\tau_{ij}$  为弛豫时间。(1) 式和 (2) 式可展开为十六个联立微分方程组, 精确求解这些方程是有一定困难的<sup>[8]</sup>, 特别对多能级系统就更为繁琐。一般是在一些假定下, 使方程简化后求近似解。

下面我们将通过一些假定, 求解方程 (1) 和 (2)。设:

$$E = \frac{1}{2} E_p \exp[i(\omega_p t + \varphi_p)] + \frac{1}{2} E_s \exp[i(\omega_s t + \varphi_s)] + \text{c.c.},$$

$$\rho_{24} = P_{24} \exp(i\omega_p t), \quad \rho_{43} = P_{43} \exp(-i\omega_s t), \quad \rho_{23} = P_{23} \exp[i(\omega_p - \omega_s)t],$$

$$\rho_{12} = P_{12} \exp(i\omega_s t), \quad \rho_{13} = P_{13} \exp(i\omega_p t), \quad \rho_{14} = P_{14} \exp[i(\omega_p + \omega_s)t], \quad \rho_{ij} = \rho_{ji}^*$$

其中  $\omega_p$  为泵频率,  $\omega_s$  为远红外激光频率,  $E_p, E_s$  和  $P_{ij}$  为与时间无关的复数。为了使方程简化, 提出下列假定:

$$\begin{aligned} \mu_{21} = \mu_{43} = \mu_s = \mu_s^*, \quad \mu_{31} = \mu_{42} = \mu_p = \mu_p^*, \\ \mu_{41} = \mu_{32} = 0, \quad \mu_{jj} = 0, \quad T_1 = \tau_{ij} = \tau_0 \end{aligned}$$

在旋转波近似下, 便可把 (2) 式简化展开为:

$$\left. \begin{aligned} L_{23}P_{23} &= P_{24}B_{43} + P_{21}B_{13} - P_{43}B_{24} - P_{13}B_{21}, & L_{24}P_{24} &= \gamma_{24}B_{24} + P_{23}B_{34} + P_{14}B_{21}, \\ L_{43}P_{43} &= \gamma_{43}B_{43} + P_{41}B_{13} - P_{23}B_{42}, & L_{12}P_{12} &= -\gamma_{21}B_{12} - P_{32}B_{13} + P_{14}B_{42}, \\ L_{13}P_{13} &= \gamma_{13}B_{13} + P_{14}B_{43} - P_{23}B_{12}, & L_{14}P_{14} &= P_{12}B_{24} + P_{13}B_{34} - P_{24}B_{12} - P_{34}B_{13}, \end{aligned} \right\} (4)$$

其中:

$$P_{ij} = P_{ji}^*, \quad L_{ij} = L_{ji}^*, \quad \gamma_{ij} = \rho_{ii} - \rho_{jj},$$

$$B_{ij} = \begin{cases} \mu_{ij} E_p \tau / 2\hbar & (i, j = 1, 3; 2, 4), \\ \mu_{ij} E_s \tau / 2\hbar & (i, j = 1, 2; 3, 4). \end{cases}$$

令:  $C = (\omega_{43} - \omega_{21})\tau$ ,  $x = \Delta\omega_p \tau = (\omega_{31} - \omega_p)\tau$ ,  $\Delta\omega_p$  为泵频失谐量,  $y = \Delta\omega_s \tau = (\omega_{21} - \omega_s)\tau$ ,  $\Delta\omega_s$  为远红外激光频率失谐量。于是

$$L_{23} = [\omega_{32} - (\omega_p - \omega_s)]\tau + i = x - y + i, \quad L_{24} = (\omega_{42} - \omega_p)\tau + i = x + C + i,$$

$$L_{43} = (-\omega_{43} + \omega_s)\tau + i = -(y + C) + i, \quad L_{12} = (\omega_{21} - \omega_s)\tau + i = y + i,$$

$$L_{13} = (\omega_{31} - \omega_p)\tau + i = x + i, \quad L_{14} = [\omega_{41} - (\omega_p + \omega_s)]\tau + i = (x + y + C) + i.$$

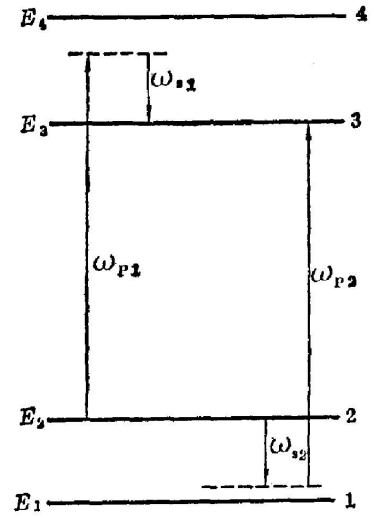


图1 能级结构和跃迁过程  
Fig. 1 Energy level scheme and transition process

同样, (1)式可以展开为:

$$\left. \begin{aligned} \dot{\rho}_{11}T_1 &= -(\rho_{11} - \rho_{11}^e) - i[B_{21}P_{12} - B_{12}P_{21} + B_{31}P_{13} - B_{13}P_{31}], \\ \dot{\rho}_{22}T_1 &= -(\rho_{22} - \rho_{22}^e) - i[B_{42}P_{24} - B_{24}P_{42} + B_{12}P_{21} - B_{21}P_{12}], \\ \dot{\rho}_{33}T_1 &= -(\rho_{33} - \rho_{33}^e) - i[B_{43}P_{34} - B_{34}P_{43} + B_{13}P_{31} - B_{31}P_{13}], \\ \dot{\rho}_{44}T_1 &= -(\rho_{44} - \rho_{44}^e) - i[B_{24}P_{42} - B_{42}P_{24} + B_{34}P_{43} - B_{43}P_{34}]. \end{aligned} \right\} \quad (5)$$

对一些典型的工作物质可设  $\mu_{13} = \mu_{24} = \mu_p = 0.05D$ ,  $\mu_{12} = \mu_{34} = \mu_s = D$ 。一般泵功率都远大于亚毫米波振荡功率, 所以可以把亚毫米波辐射对  $\rho_{ij}$  的影响忽略不计。泵脉冲的持续时间一般为 100 ns, 而一般  $\tau_{ij}$  的数量级为 10 ns, 因而可以近似地把系统的工作看作是稳定状态, 即  $\dot{\rho}_{11} = \dot{\rho}_{22} = \dot{\rho}_{33} = \dot{\rho}_{44} = 0$ 。于是(5)式可解得:

$$\gamma_{13} = \gamma_{13}^e \frac{|L_{13}|^2}{|L_{13}|^2 + 4|B_{13}|^2}, \quad (6)$$

$$\gamma_{24} = \gamma_{24}^e \frac{|L_{24}|^2}{|L_{24}|^2 + 4|B_{24}|^2}, \quad (7)$$

$$\gamma_{21} = \gamma_{21}^e \left[ \frac{2\gamma_{24}^e |B_{24}|^2}{|L_{24}|^2 + 4|B_{24}|^2} - \frac{2\gamma_{13}^e |B_{13}|^2}{|L_{13}|^2 + 4|B_{13}|^2} \right], \quad (8)$$

$$\gamma_{43} = \gamma_{43}^e \left[ \frac{2\gamma_{24}^e |B_{24}|^2}{|L_{24}|^2 + 4|B_{24}|^2} - \frac{2\gamma_{13}^e |B_{13}|^2}{|L_{13}|^2 + 4|B_{13}|^2} \right], \quad (9)$$

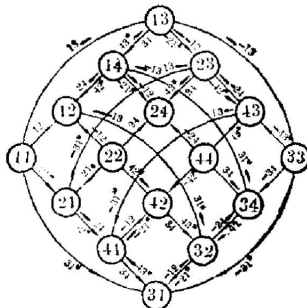


图 2 四能级系统量子跃迁的信号流量

Fig. 2 Signal-flow diagram of quantum transition in four-level system

其中  $\gamma_{ij}^e = \rho_{ii}^e - \rho_{jj}^e$ 。

利用信号流图方法<sup>[13, 14, 15]</sup>解方程组(4), 按信号流图规则将方程组列成信号流图, 如图 2 所示。图中加圆圈的  $jj \sim P_{jj}$ , 加圆圈的  $ij \sim P_{ij}$ , 和  $ij \sim B_{ij}$ 。按上面所提出的简化条件, 设  $|B_s| \ll |B_p|$ , 可以将流图删裁简化, 再利用梅森公式, 可得下列结果:

$$P_{21} = \frac{1}{\Delta} \frac{B_s^*}{L_{21}} \left[ \gamma_{12} + \frac{B_p^2}{L_{43}} (\gamma_{12} + \gamma_{34}) \left( \frac{1}{L_{41}} - \frac{1}{L_{23}} \right) + \frac{B_p^2}{L_{23}} \left( \frac{\gamma_{13}}{L_{13}} - \frac{\gamma_{24}}{L_{24}} \right) + \frac{B_p^2}{L_{41}} \left( \frac{\gamma_{13}}{L_{31}} - \frac{\gamma_{24}}{L_{42}} \right) \right], \quad (10)$$

$$P_{43} = \frac{1}{\Delta} \frac{B_s^*}{L_{43}} \left[ \gamma_{43} + \frac{B_p^2}{L_{21}} (\gamma_{12} + \gamma_{34}) \left( \frac{1}{L_{41}} - \frac{1}{L_{23}} \right) + \frac{B_p^2}{L_{23}} \left( \frac{\gamma_{13}}{L_{13}} - \frac{\gamma_{24}}{L_{24}} \right) + \frac{B_p^2}{L_{41}} \left( \frac{\gamma_{13}}{L_{31}} - \frac{\gamma_{24}}{L_{42}} \right) \right], \quad (11)$$

其中

$$\Delta = 1 - B_p^2 \left( \frac{1}{L_{21}} - \frac{1}{L_{43}} \right) \left( \frac{1}{L_{41}} - \frac{1}{L_{23}} \right), \quad (12)$$

并假定了  $B_{13} = B_{24} = B_p$ ,  $B_{12} = B_{34} = B_s$ , 从这一结果便可算得系统的增益系数。设  $I_0$  为输入端远红外光强,  $I$  为在距离输入端  $z$  距离处的远红外光强, 则两者有如下关系:

$$I = I_0 e^{-\Gamma z}, \quad (13)$$

其中  $\Gamma$  与  $P_{21}$  和  $P_{43}$  的关系为<sup>[19]</sup>:

$$\Gamma = -\frac{\omega_s}{\eta C} N_v \frac{2\hbar}{\varepsilon_0 E_s^2 \tau} B_s I_m (P_{21} + P_{43}), \quad (14)$$

其中  $\eta = \sqrt{\varepsilon/\varepsilon_0}$ 。当  $\Gamma < 0$  时系统具有一定放大作用, 因而可得系统的增益系数为:

$$G = -\Gamma = \frac{\omega_s}{\eta C} N_v \frac{2\hbar}{\epsilon_0 E_s^2 \tau} B_s I_m (P_{21} + P_{43}), \quad (15)$$

式中  $N_v$  为单位体积内对激射有贡献的工作物质分子数。

### 三、四能级系统远红外激射器的频率调谐

从(10)式和(11)式可以看出,右侧第一项是单光子过程的贡献,当  $x=0$  或  $y=0$  时系统增益系数将出现一共振峰值。但可以看到第一次的数值是不直接与  $B_p$  有关的,因此当  $B_p^2$  很大时,单光子过程的贡献可能被后面两项所掩盖。后面三项是双光子过程占主导地位,其数取决于  $L_{41}=x+y+C+i$  和  $L_{23}=x-y-i$  的值的大小。

现在应用  $\text{CH}_3\text{F}$  分子能级参数对(10)、(11)和(15)式的数字进行计算。为了演示交流斯塔克(Stark)效应,首先设能级 4 不存在,或这一能级与 1, 2, 3 能级相隔较远,则这个系统的增益特性将与三能级系统中的双光子过程相一致<sup>[8]</sup>。计算结果如图 3 所示。从图 3 结果可见(10)、(11)和(15)式的计算与一些学者工作<sup>[8, 15]</sup>结果基本相同。

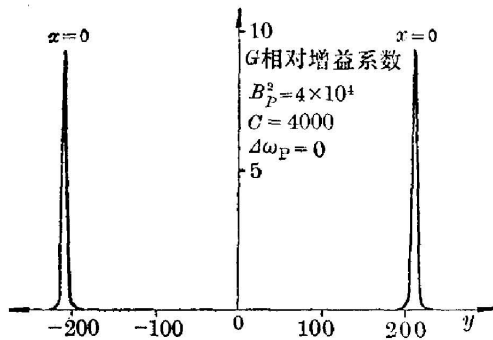


图 3 当能级 4 远离其它三个能级时系统的增益系数  $G$  与信号失谐量  $y$  的关系

Fig. 3 Dependence of gain coefficient  $G$  on signal detuning  $y$  when level 4 far from other three levels

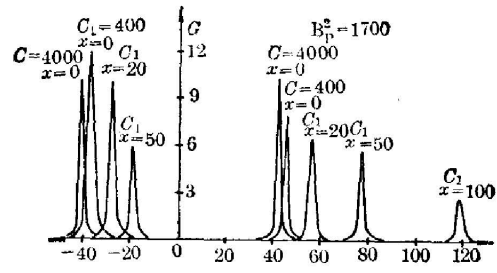


图 4 交流斯塔克效应受第四能级及泵频失谐的影响

Fig. 4 A. C. Stark effect subject to the fourth level and pumping frequency detuning

当  $C$  值不太大时,例如令  $C=400$ ,上述三能级的结果将受到 2, 3, 4 三个能级间双光子过程的影响,使两个交流斯塔克效应所形成的双峰的位置不对称,且其峰值大小也不相同,其结果如图 4 所示。

从图 4 结果可知,当不存在第四能级影响或影响较小的情况下,交流斯塔克效应所形成的两个增益峰值对应的远红外失谐量  $y$  对纵坐标是对称的,当  $C$  值从 4000 变为 400,第四能级的影响增大了,这时两个交流斯塔克效应形成的增益峰值及其在横坐标上的位置,都出现了不对称。另一种情况是:如果泵频率有一定失谐量,这时交流斯塔克峰在横坐标上的位置向一个方向位移,峰值位置所对应的远红外失谐量  $y$  与泵频失谐量  $x$  并不相等,而且两峰值的高度差别亦随泵频失谐量的增加而越变越大。当泵频失谐量较大时,两个峰中的峰值较大者所对应的远红外失谐量随泵频失谐量的增大逐渐接近泵频失谐量值(即  $y \rightarrow x$ )。这

时反映出双光子过程的贡献逐渐取得主导地位。

将四能级系统取  $G$  为峰值下的远红外信号失谐量与泵频失谐量之间关系为图 5 所示的曲线,称之为调谐曲线。

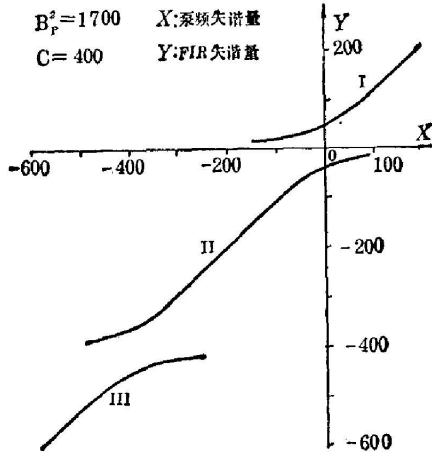


图 5 远红外输出失谐量与泵频失谐量关系曲线  
Fig. 5 Relationship of the far infrared output detuning with the pumping frequency detuning

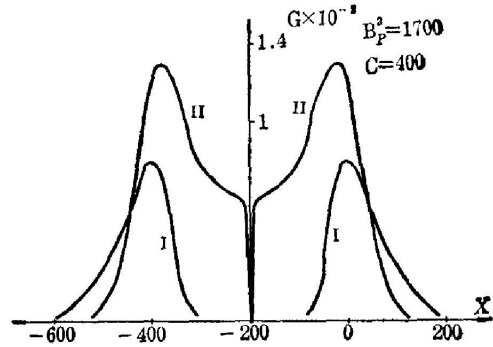


图 6 系统增益系数与泵频失谐量的关系  
Fig. 6 Relationship of the gain coefficient with the pumping frequency detuning

从图 5 可知,对四能级系统,远红外输出调谐曲线可分为三段:第 I 段调谐范围是  $y > 0$ ,第 II 段调谐范围是  $0 > y > -C$ ,第 III 段调谐范围是  $y < -C$ 。看来似乎可以得到相当大的调谐范围。但是对一个激光系统来讲,当须考虑系统增益问题时,如果调谐范围大而增益系数太小是没有实用价值的。图 6 表示系统的增益系数与泵频失谐量之间的关系曲线。

从图 6 可知,泵频失谐量  $\tau\Delta\omega_p > 100$  或  $\tau\Delta\omega_p < -(C+100)$  时,系统的增益迅速下降,使得系统失去了实用价值。同时在系统调谐频段的中点有个带宽约为 15 MHz 的下陷。当泵功率增大,由于交流斯塔克稍有扩大,计算表明当  $B_p^2=1700$ ,  $\tau\Delta\omega_p=200$  时得  $\tau\Delta\omega_s=214$ ,相对增益系数只有 0.079,而当  $B_p^2=17000$ ,  $\tau\Delta\omega_p=200$  处可得  $\tau\Delta\omega_s=290$ ,相对增益系数为 0.19。这一点说明泵功率增加 10 倍,调谐范围的增加是很有限的。

### 四、结果的讨论

(1) 从以上计算结果表明,四能级量子系统在大功率光泵的作用下,通过改变泵的速率,可以达到在远红外频率区连续调谐的目的。频率调谐范围约为  $\Delta\omega_s=C/\tau$ ,即约等于  $\omega_{43}-\omega_{21}$ ,因此对工作物质的选择应尽量选用  $\omega_{43}-\omega_{21}$  较大的工作物质。

(2)  $\Delta\omega_s$  随  $\Delta\omega_p$  的变化并不是线性的,这是因为系统的变化不单纯是双光子过程的贡献,而是双光子过程与交流斯塔克效应共同贡献的结果。 $\tau\Delta\omega_p \sim 0$  或  $C$  时,交流斯塔克效应的贡献比较显著。第四能级的存在对能级  $1 \rightarrow$  能级  $2 \rightarrow$  能级  $3$  跃迁的交流斯塔克效应的影响是明显的,不但影响其失谐量,同时也影响能级 2 和能级 1 的粒子数反转。四能级系统

中,当  $x = -C/2$  时,同时存在着能级  $2 \rightarrow$  能级  $1 \rightarrow$  能级  $3$  和能级  $2 \rightarrow$  能级  $4 \rightarrow$  能级  $3$  共振喇曼过程与能级  $1 \rightarrow$  能级  $2 \rightarrow$  能级  $4$  和能级  $1 \rightarrow$  能级  $3 \rightarrow$  能级  $4$  双光子共振吸收过程,这两个过程在  $x = -C/2$  的条件下都处于共振状态,而双光子吸收的始态是  $|1\rangle$ ,因而在这条件下,这两个过程是后者占主导地位。所以,在  $x = -C/2$ ,便出现了负增益的情况。但只要  $x$  偏离  $-C/2$ ,则双光子吸收占主导地位。

本工作得到美国伊里诺斯大学 T. A. DeTemple 教授,麻省理工学院 R. J. Temkin 教授和中山大学丘秉生同志有益的讨论与帮助,特此致谢。

### 参 考 文 献

- [1] T. Y. Chang, T. J. Bridge; *Opt. Commun.*, 1970, **1**, No. 4 (Apr), 432.
- [2] J. J. Gallagher, M. D. Blue *et al.*; *Infrared Phys.*, 1977, **17**, No. 1 (Jan), 43.
- [3] D. T. Hodges; *Infrared Phys.*, 1978, **18**, No. 5 (Sep) 375.
- [4] E. J. Danielewicz, C. O. Weiss; *Opt. Commun.*, 1978, **27**, No. 1 (Oct), 98.
- [5] E. J. Danielewicz, R. D. Reel *et al.*; *IEEE J. Q. E.*, 1980, **QE-16**, No. 4 (Apr), 402.
- [6] A. DeMartino, R. Frey *et al.*; *Opt Commun.*, 1978, **27**, No. 2 (Nov), 262. A. DeMartino, R. Frey *et al.*; *IEEE J. Q. E.*, 1980, **QE-16**, No. 11 (Nov), 1184.
- [7] C. K. W. Patel *et al.*; *A. P. L.*, 1979, **34**, No. 5 (1 Mar), 318.
- [8] R. L. Panock, R. J. Temkin *et al.*; *IEEE J. Q. E.*, **QE-13**, No. 6 (Jun), 425.
- [9] R. Frey, F. Pradere, *et al.*; *Opt. Commun.*, 1977, **23**, No. 1 (Oct), 23.
- [10] R. J. Temkin, D. G. Biron *et al.*; *Fourth International Conference on IR and MM Wave Digest*, 232.
- [11] S. J. Petuchowski, A. T. Rosenberger *et al.*; *IEEE J. Q. E.*, 1977, **QE-13**, No. 6 (Jun), 476.
- [12] H. R. Fetterman *et al.*; *A. P. L.*, 1979, **34**, No. 2 (15 Jan), 123.
- [13] T. A. DeTemple, S. J. Petuchowski *et al.*; *Phys. Rev. (A)*, 1980, **22A**, No. 6 (Dec), 2636.
- [14] H. K. Chung, T. A. DeTemple; *Phys. Rev. (A)*, 1980, **22A**, No. 6 (Dec), 2646.
- [16] T. A. DeTemple in *IR and MM Waves: Vol. 1*, Ed. by K. Button; (Academic Press, NY, 1979).
- [15] T. A. Temple, H. K. Chung *et al.*; *International J. IR and MM Waves*, 1980, **1**, No. 1, 27.
- [17] S. J. Petuchowski *et al.*; *Phys. Rev. (A)*, 1979, **20A**, No. 2 (Aug), 529.
- [18] J. R. R. Leite *et al.*; *Phys. Rev. (A)*, 1976, **14A**, No. 3 (Sep), 1151.
- [19] R. H. Pantell, H. E. Puthoff; *Fundamentals of Quantum Electronics* (Wiley, NY, 1969).

## Two-photon processes in four levels system

LIN YIKUN AND GONG DI

(Submillimeter Wave Research Lab., Zhongshan University, Guangzhou)

(Received 22 June 1981)

### Abstract

Optically pumped FIR lasers give only discrete spectrums. This property restricts the practical use of lasers. Since 1977, many research works have been done to tune the output frequency of FIR laser, of which some are tried to find the possibility of tuning the laser lines by changing the pumping frequency continuously. But it is not easy to

---

get an accurate result due to the complexity of theoretical calculation especially for quantum system of more than three energy levels. In this research work, two photon processes in four levels system have been studied by means of graph theory, which was developed by T. A. DeTemple et al. It was found that the output frequency of optically pumped FIR laser could be tuned with a frequency range equal to the frequency difference of two FIR transition frequencies. The tuning curves of FIR frequency and the curves of system gain coefficient vs. pump detuning frequencies were given.