

光泵远红外激光中的偏频泵 交流斯塔克效应

林贻堃 官蒂 黎耀
(中山大学无线电电子学系)

提 要

本文研究在六能级系统中的 R_{35} , T_{34} 和 S_{54} 过程的相互作用。本文从理论研究中发现在偏频泵作用下, 这些多光子过程的相互作用也会导致激光谱线的分裂。这就是偏频泵交流斯塔克(AC Stark)效应。这三个过程都受到饱和效应和电偶极增强效应的影响, 但其效果各不相同, 利用这一特点, 可以通过注入远红外信号以区分各过程对系统增益和偏频泵交流斯塔克效应的贡献。

一、引 言

光泵远红外激光的产生通常来自分子振-转能级之间的受激跃迁, 在这过程中, 吸收红外光子的能量约为 1073 cm^{-1} , 发射亚毫米波、远红外光子的能量约为 $2 \sim 100 \text{ cm}^{-1}$ 。远红外激光的光子能量约为 $27 \sim 50 \text{ cm}^{-1}$, CH_3F 分子两对相邻转动能级间亚毫米波跃迁发射光子的能量之差约为 1.6 cm^{-1} 。根据光泵激光理论可知, 转动能级间的能量差与光子的能量有一定偏差情况下, 量子跃迁几率不一定等于零。因此, 在一定光泵条件下, 光泵远红外激光系统可能同时存在几个多光子过程, 它们之间就可能产生相互作用, 其结果可能不利于激光的产生, 也可能有利于激光的产生^[1]。

本文通过解系统的密度矩阵方程, 对系统的 R_{35} , T_{34} 和 S_{54} 三种过程进行理论研究, 揭示了在泵浦光频率偏离工作物质共振吸收情况下的交流斯塔克效应。

二、密度矩阵方程的解

六能级系统在光泵的作用下, 其内部所产生的变化过程和效应, 可以通过解系统的密度矩阵方程进行研究。六能级系统的密度矩阵方程为

$$\left. \begin{aligned} i\hbar \frac{\partial \rho_{ij}}{\partial t} &= [H', \rho]_{ij} + \frac{i\hbar}{\tau_{ij}} (\rho_{ji}^e - \rho_{ij}), \\ i\hbar \frac{\partial \rho_{ij}}{\partial t} &= \hbar\omega_{ij}\rho_{ij} + [H', \rho]_{ij} - \frac{i\hbar}{\tau_{ij}} \rho_{ij}, \end{aligned} \right\} \quad (1)$$

其中 $i, j=1, 2, \dots, 6$ 。如不假设远红外激光的场强 $E_{\text{FIR}} \simeq 0$, (1) 式可展开为三十六个复数联立微分方程组。在旋转波近似下^[1,11], 可简写成矩阵方程形式, 再经矩阵运算把复数矩阵方程的实部与虚部分开, 求得如下实数矩阵方程

收稿日期: 1985年10月7日; 收到修改稿日期: 1986年2月4日

$$(Y + D)P_I = E, \quad (2)$$

其中 $P = (P_{13}P_{14}P_{15}P_{16}P_{24}P_{25}P_{26}P_{34}P_{35}P_{36}P_{65}P_{54}P_{12}P_{13})^T = P_R + iP_I$ 。系统的增益系数

$$\left. \begin{aligned} G_s &= -\frac{2N_s \mu_s^2 \nu}{\epsilon_0 \eta c \hbar B_s} \omega_s \operatorname{Im}(P_{21} + P_{32} + P_{54} + P_{65}), \\ G_p &= -\frac{2N_p \mu_p^2 \nu}{\epsilon_0 \eta c \hbar B_p} \omega_p \operatorname{Im}(P_{41} + P_{52} + P_{63}), \end{aligned} \right\} \quad (3)$$

其中各物理量的意义同文献[1]。可见 G_s 和 G_p 是 B_s 、 B_p 、 x 和 y 的函数。计算结果 G_p 总是负值。

三、多光子过程 R_{35} 、 T_{34} 、 S_{54} 的相互作用

这三个多光子过程的能级跃迁如图 1 所示，其中 T_{34} 、 R_{35} 和 S_{54} 分别为从能级 3→4、3→5 和 5→4 的三光子过程、喇曼过程和单光子过程。

这三个过程都发射远红外光子。我们可以控制泵浦的条件，使这三个过程在同一频率泵浦的作用下，发射相同频率的远红外光子。 T_{34} 过程发射两个频率接近 S_{54} 跃迁的光子， R_{35} 过程由于交流斯塔克效应，它可能发射两种频率的远红外光子，其中一个光子的频率与 T_{34} 过程发射的光子频率相同，另一个光子频率接近 S_{54} 跃迁的频率。 S_{54} 跃迁因受到 R_{24} 过程的作用，它发射的远红外光子频率稍偏离 S_{54} 共振跃迁频率。由于它们吸收同样频率的红外光子，发射同样频率的远红外光子，因此，这三个过程之间的相互作用是比较强烈的。它们受到远红外光子的反作用所产生的效应也是不相同的^[6]。 S_{54} 是单光子过程，它的跃迁几率比较大，由于它受远红外光子的反作用，极易饱和，因此对系统远红外增益系数的贡献迅速下降。 R_{35} 是喇曼过程、是双光子过程，远红外光子对它还具有一些电偶极跃迁增强作用，因此它也有饱和效应，但比 S_{54} 小些。 T_{34} 是三光子过程，它受远红外光子的反作用而产生的电偶极跃迁增强作用较强。当 $B_s = 30$ 时，三光子过程对系统增益的贡献最大，如 B_s 继续增大，则饱和效应便逐渐占主导地位。在激光系统中从激光器的泵浦输入端开始沿着光轴，激光器的不同截面处远红外激光能量是逐步增大的，这样 R_{35} 、 T_{34} 和 S_{54} 三者相互作用的条件将是不断变化的。

初期，远红外信号很弱， T_{34} 的跃迁几率很低，这时 T_{34} 的贡献很微弱，多光子过程相互作用只在 R_{35} 与 S_{54} 之间进行，从图 2 可见，(图中 f_{ij} 表示 ij 过程的频率调谐曲线， G_{ij} 表示增益特性曲线)，相互作用的结果 R_{35} 和 S_{54} 的调谐曲线都有一定变形， R_{35} 调谐曲线在相互作用区内中断，说明这两过程竞争结果 S_{54} 占了优势。在泵浦场的作用下， R_{35} 和 S_{54} 两过程对系统增益都是正贡献。在 $x = 508$ ， $y = 590.5$ 处出现一个增益峰。这结果可以从图 1 的能级跃迁过程得到解释。 R_{35} 过程进行的结果不断地把能级 3 上的粒子泵浦到能级 5，这样便增加了能级 5 的布居数，加大了能级 5、4 之间的粒子数反转，即由于 R_{35} 喇曼跃迁的结

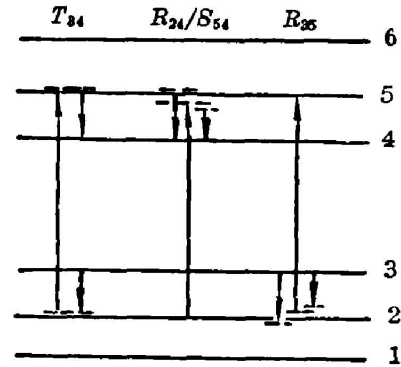


Fig. 1 Quantum transitions of T_{34} , R_{35} and S_{54} in a sixlevel system

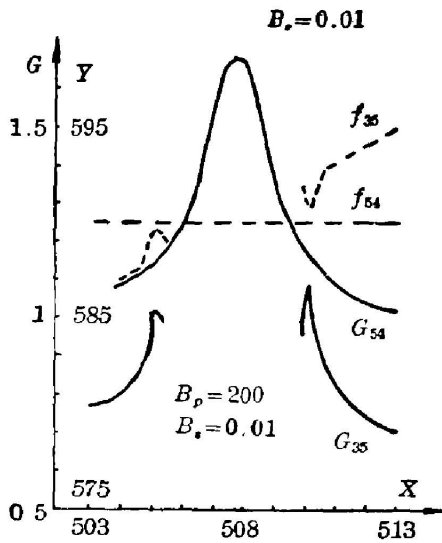


Fig. 2. Interactions among R_{35} , T_{34} and S_{54} processes for $B_1=0.01$

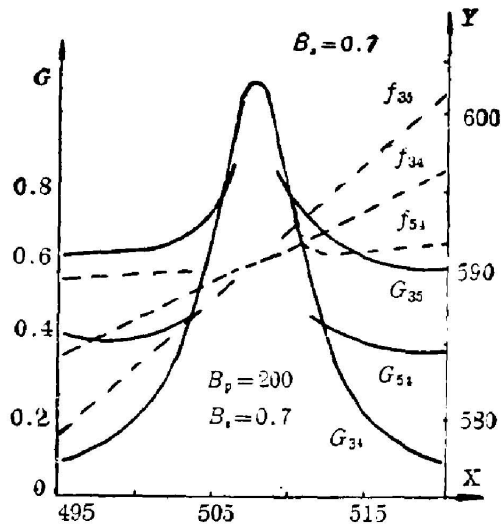


Fig. 3. Interactions among R_{35} , T_{34} and S_{54} processes for $B_1=0.7$

果, 增强了 S_{54} 的跃迁几率, 从而产生了特强了增益峰。在增益峰所在的区域内 R_{35} 的调谐曲线中断, 这表示了 R_{35} 过程在这区域内竞争处于劣势。

由于 S_{54} , T_{34} 和 R_{35} 过程受 B_1 的影响各不相同, 当 B_1 增加时, 这三个过程的跃迁几率有的迅速下降, 有的反而增高。现令 $B_1=0.7$, 这样与图 2 情况相比, B_1 增加了 70 倍, 结果 T_{34} 过程由于电偶极跃迁增强效应^[6], 跃迁几率大为提高, 形成如图 3 的结果。从图 3 可见, T_{34} 过程的增益系数增加, 其极大值达到 1.08 cm^{-1} , 这对高阶的多光子过程来说, 表明它受到相当大的增强, 显然其中也包含 R_{35} 和 S_{54} 的贡献。

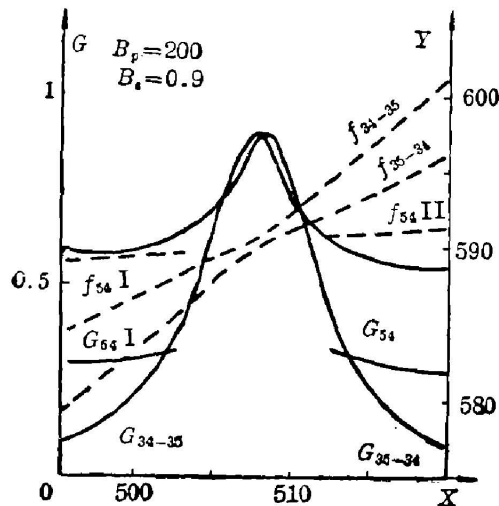


Fig. 4. Interactions among R_{35} , T_{34} and S_{54} processes for $B_1=0.9$

在相互作用区外, 这三个过程对系统增益的贡献 R_{35} 最大, S_{54} 次之, T_{34} 最小。 T_{34} 最小是由于它是个高阶的多光子过程, 虽得到电偶极跃迁增强作用, 但仍然远小于其它过程; 在相互作用区内, 三个过程所发射的远红外光子频率很接近, 这样 T_{34} 便得到很大的增强。

如果 B_1 的值从 0.01 增长到 0.9, 这时 T_{34} 过程继续受 B_1 的电偶极跃迁增强作用, 它的跃迁几率增大, 对系统增益的贡献也增大, 而 S_{54} 过程在远红外信号的作用下, 由于饱和效应, 它对系统增益的贡献继续减少, 在相互作用中心区处, 它的频率调谐曲线中断, 如图 4 所示*。在中心区还出现与喇曼过程的交流斯塔克效应相似的现象。这时, T_{34} 和 R_{35} 的跃迁几率都较大。 T_{34} 由于电偶极跃迁增强作用,

* 图中 f_{54I} , f_{54II} 分别表示 S_{54} 过程中断成两部分后的第 I 部分和第 II 部分频率调谐曲线。

R_{35} 是比较低阶的过程, 所以它们对系统增益的贡献都比较大, 两者相互作用产生频率调谐曲线的牵引, 但频率调谐曲线不中断, 出现 T_{34} 到 R_{35} 和 R_{35} 到 T_{34} 过渡的两条连续的调谐特性曲线。在中心区处这两条曲线不相交, 因此在 $\alpha=507.5$ 的泵浦频率作用下, 系统增益特性出现两个远红外频率不同的增益峰, 这时泵浦频率偏离共振吸收频率约 8GHz。这情况与喇曼过程的交流斯塔克效应不同, 我们称之为偏频泵交流斯塔克效应。

四、偏频泵交流斯塔克效应

交流斯塔克效应早已被人们从理论和实验方面进行了研究^[4,7,8], 在泵浦频率偏离共振, 而 T_{34} 、 R_{35} 和 S_{34} 过程同时处于共振的情况下, 只要注入足够的远红外信号强度, 则也存在这种现象。在这条件下, 远红外谱线分裂为二, 谱线分裂的情况与一般交流斯塔克分裂一样。当泵浦频率偏离三个过程频率调谐曲线的交会点时, 谱线分裂增大, 而且两谱线强度不相同。调节泵浦频率使远红外谱线分裂为最小值时, 定义此时为交流斯塔克分裂。这时分裂的两谱线高度相同。偏频泵交流斯塔克分裂与远红外信号强度有直接关系, 而与泵浦强度关系不大。当 $B_p > 0.8$ 时所出现的交流斯塔克效应, 如图 5 所示 ($B_p=200$, $\alpha=507.5$ 的条件下获得的曲线)。从图 5 可见, 谱线分裂值几乎与 B_p 成正比关系。偏频泵交流斯塔克效应的临界条件是 $B_p=0.9$, 这与喇曼过程的交流斯塔克效应临界条件 $B_p=0.9$ 很相似。

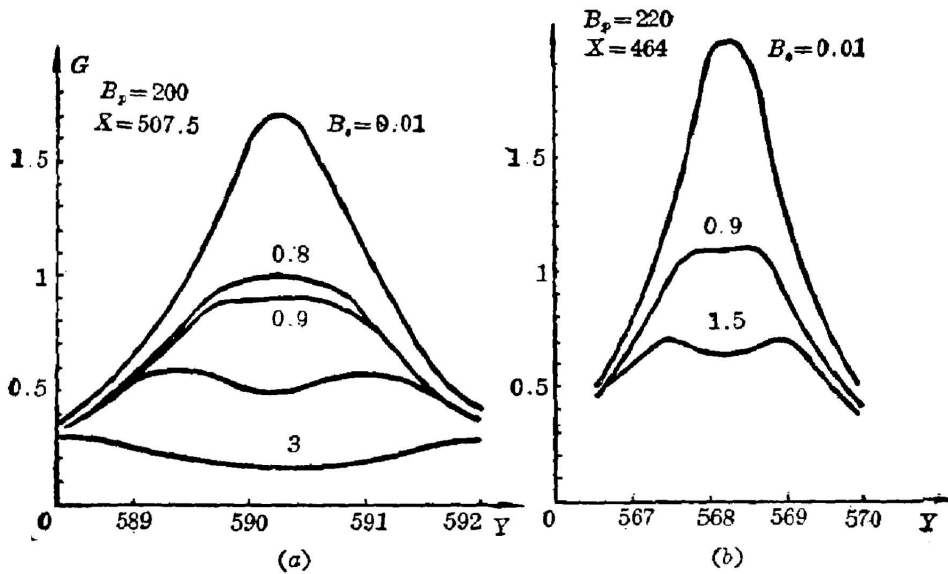


Fig. 5 Off-resonant AC Stark effect in optically pumped FIR lasers

五、总输出的偏频泵交流斯塔克效应

总之分析可知, 当 $B_p > 0.9$ 时, T_{34} 和 R_{35} 过程相互作用产生偏频泵交流斯塔克效应, 远红外激光谱线分裂值 $\Delta\nu \approx B_p$, 谱线的频率与 B_p 有明显关系。当 B_p 增加时, 远红外激光谱线波长红移。沿激光器光轴方向移动, B_p 的值由于工作物质的吸收将不断减少, 而由于

工作物质对远红外信号具有正增益, 因而 B_s 沿光轴方向增加, 所以偏频泵交流斯塔克效应沿着光轴各点均不相同。上节的计算结果只能反映激光器内的局部, 而不能反映激光器的总输出的偏频泵交流斯塔克效应。

将激光器类比于级联放大器, 可以把激光器分作若干小段, 各段相当于一个放大器, 激光器的总输出相当于级联放大器的总输出。根据这个原理, 我们采用迭代法计算激光器的远红外激光总输出。计算结果如图 6(a)、(b)、(c) 所示。图 6(a) 表示当 $B_{s0}=1.7 \times 10^{-7}$ 相当于 $I_{s0}=10^{-13}$ W/cm², $B_p=200$, 相当于 $I_{p0}=10$ MW/cm², $x=507.4$ 的条件下。激光器的远红外输出功率的频谱, 当 $z=120$ cm 时, 激光器的最大输出是 $y=590.25$, $I_s \approx 580$ W/cm², 输出看不出有交流斯塔克分裂, 远红外频谱是单峰的。图 6(b) 表示 $B_{s0}=0.9$, 相当于 $I_{s0}=2.778$ W/cm², $B_p=200$, $x=507.4$ 时, 激光器的远红外输出功率的频谱。随 z 的增大激光器的输出功率也增加。输出功率的频谱明显地表现出具有双峰结构, 当激光管长度 $z=120$ cm 时, 激光器输出功率达到 830 W/cm², 由于偏频泵交流斯塔克效应引起的谱线分裂约为 73 MHz。图 6(c) 表示当 $B_{s0}=0.01$, 相当于 $I_{s0}=0.34$ mW/cm², $B_p=200$, $x=507.4$ 时激光器的远红外输出功率的频谱。在这条件下, 从图 4 结果看出, 当 B_{s0} 如此小时, 激光器系统单位长度的增益特性应当是单峰的, 峰值位置是 $x=507.4$, $y=590$ 。但这是假定了 B_p 和 B_s 值都不变时的结果, 对一个光泵远红外激光器来讲, 沿着光轴方向 B_p 不断减少, B_s 不断增加, 总的远红外激光输出功率达 650 W/cm², 中心频率为 $y=590$ 。所以当 $B_{s0}=0.01$ 时, 系统的总输出便开始出现交流斯塔克分裂现象。从图 6(c) 可见, 当激光管的长度为 $z=50$ cm 时, 总的远红外输出频谱是平顶单峰的; 当 $z > 50$ cm 时, 总的远红外输出频谱便出现双峰。这说明, 远红外信号强度在系统内的增长, 到一定强度时, 才出现偏频泵交流斯塔克分裂现象。

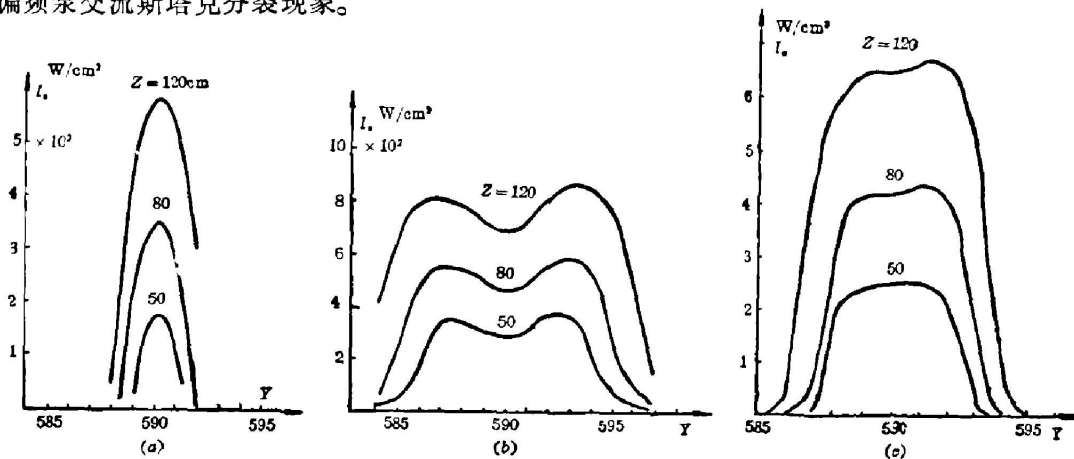


Fig. 6 Off-resonant AC Stark effect in the total output power of optically pumped FIR lasers

(a) $B_p=200$, $B_s=1.7 \times 10^{-6}$, $x=507.4$; (b) $B_p=200$, $B_s=0.9$, $x=507.4$;
(c) $B_p=200$, $B_s=0.01$, $x=507.4$

六、结 论

本文主要是对多光子过程 S_{54} 、 R_{35} 、 T_{34} 之间的相互作用以及偏频泵交流斯塔克效应进

行了研究。预见连续可调谐光泵激光的一些特殊现象,并用迭代法计算了激光器总输出的偏频泵交流斯塔克效应的产生规律。

(1) 在一般情况下,光泵远红外激光器输入端只有泵浦信号,不注入远红外信号,即在输入端只有由热噪声频谱中的远红外部分 $I_s \approx 10^{-13} \text{ W/cm}^2$ 。如果激光管的长度为 120 cm,则远红外激光输出频率,相当于 $x=507.4$, $y \approx 590$, $B_p=200$ 时,连续可调光泵远红外激光器(工作物质为 CH_3F 气体)的输出特性曲线将有个突出的单峰,这是三个多光子过程 S_{34} 、 R_{35} 、 T_{34} 相互作用的结果。

(2) 光泵远红外激光器的输入端除了泵浦信号外如果再注入适当频率的远红外信号^[9,10],如果信号的功率密度大于 0.34 mW/cm^2 ,则上述输出远红外激光的频谱将分裂为二,这现象是三光子过程和喇曼过程相互作用的结果。这效应有别于已发现的交流斯塔克效应,我们简称它为偏频泵交流斯塔克效应。这里的偏频是指泵浦功率的频率偏离了工作物质对泵浦的共振吸收频率。

(3) 偏频泵交流斯塔克分裂的值与 B_{p0} 有直接的关系。从激光器的局部来看,分裂值几乎与 B_{p0} 值成正比关系,对整体来看,由于激光管的不同截面处的 B_s 值不相同,谱线分裂的值与 B_s 的关系只能从迭代计算的总结果来确定。从以上的分析可以看出,偏频泵交流斯塔克分裂值主要决定于 B_s 的大小。尽管在系统中 B_{p0} 远大于 B_s ,但 B_s 仍起主导作用。

参 考 文 献

- [1] Lin Yikun *et al.*; *Int. J. IR and MM Waves*, 1982, **3**, No. 4 (Aug), 533.
- [2] D. G. Biron; *Doctorial Dissertation*, MIT, 1981.
- [3] B. G. Danly *et al.*; *7th Int. Conf. & MM Waves, Marseille, France, 1983*.
- [4] 林贻堃, 官蒂; *《光学学报》*, 1982, **2**, No. 3 (May), 210.
- [5] 黎耀·中山大学硕士论文, 1984.
- [6] 林贻堃, 丘秉生, 黎耀; 即将发表.
- [7] R. L. Panock *et al.*; *IEEE J. Quant. Electron.*, 1977, **QE-13**, No. 6 (Jun), 425.
- [8] C. H. Townes, A. L. Schawlow; *《Microwave Spectroscopy》*, (Dover Publication, Inc. N. Y., 1975), 279.
- [9] C. Y. R. Wu, J. K. Chou; *Opt. Commun.*, 1984, **50**, No. 5 (Jul), 317.
- [10] G. D. Willeberg, J. Heppner *et al.*; *IEEE J. Quant. Electron.*, 1982 **QE-18**, No. 12 (Dec), 2060.

Off-resonant-pumping AC Stark effect in an optically pumped FIR laser

LIN YIKUN, GONG DI AND LI YAO

(Department of Radio Electronics, Zhongshan University, Guangzhou)

(Received 7 October 1985; revised 4 February 1986)

Abstract

The interactions among R_{35} , T_{34} and S_{54} processes in a six-level system were studied. Near the cross point of the resonant curves of these processes in the multiphoton resonance diagram of the six-level system, such interactions should be very strong. We found theoretically that in the case of off-resonant-pumpng, the interactions among these multiphoton processes should also lead to splitting of the laser spectral line, which is called off-resonant-pumping AC Stark effect. Because the influences of saturation effect and electric dipole transition enhancement effect were not the same for different multiphoton processes, contributions of different multiphoton processes to the off-resonant AC Stark effect could be distinguished by the injection of FIR signal into the system.