

光泵远红外激光拉曼光谱中的频谱尖峰现象*

张 迅, 肖冬梅, 张 萍, 陈伟斌, 罗锡璋
(中山大学电子与通信工程系, 广东 广州 510275)

摘 要: 在半经典密度矩阵理论的基础上, 理论研究了多纵模 CO₂-9R(30)光泵小型腔式 NH₃ 分子远红外激光的 spike 尖峰现象, 提出 spike 现象是由于 AC Stark 分裂的双光子过程产生竞争效应, 导致一个 AC Stark 分裂峰比另一个 AC Stark 分裂峰的输出光谱强度大, 再加上激光共振腔输出的纵模频谱特性而形成的。

关键词: 光泵远红外激光; spike 尖峰现象; 频谱特性

中图分类号: O433.54 **文献标识码:** A **文章编号:** 0529-6579 (2004) 01-0037-03

秦家银等^[1]曾在 1996 年报道了 CO₂-10R(6)泵浦 NH₃ 分子的 V₂:aR(0,0)跃迁计算中得到“尖峰”spike 现象。除了 NH₃ 分子中跃迁外, 其它光泵 NH₃ 分子远红外跃迁的理论频谱中还没有发现 spikes 现象。作者发现 CO₂-9R(30)泵浦下 NH₃ 分子 S→aP(6,0)跃迁(图 1)也存在 spike 现象。理论计算表明, 由于 AC Stark 分裂的双光子相互作用, 将导致在某些情况下, 在输出频谱曲线上表现为 spike 现象。

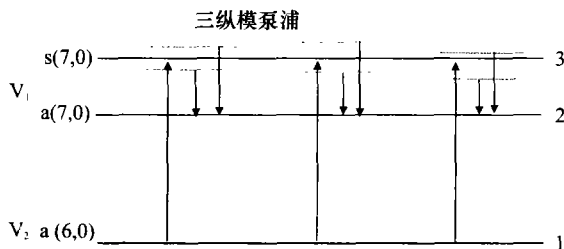


图 1 氨分子系统中的量子跃迁过程——三能级近似
Fig.1 Quanta transition process in NH₃ molecules system with three-longitudinal-mode pumping

1 计算方法

1.1 半经典密度矩阵理论

半经典理论密度矩阵理论是成功求解光泵气体分子远红外激光的工具, 它的基本思想是将激光辐射场看作经典的、由麦克斯韦方程描述的电磁波场, 将介质原子(或分子或其它微观粒子)看作薛定谔方程描述的量子力学系统。场对介质的作用表现为薛定谔方程中的微扰哈密顿量, 场的扰动可使原子的状态发生变化; 而介质对场的作用归结为

麦克斯韦方程中的极化强度项, 亦即极化介质作为场的发射源又可使场发生变化。这种相互作用反复进行, 直至自洽。根据这一思想就可以建立激光自洽场的振幅和频率方程。采用量子统计的密度矩阵方法导出极化强度进而求解自洽方程, 便可获得激光辐射场的理论认识。

对 NH₃ 分子系统作三能级系统近似, 角频率分别为 ω_{p0} 、 ω_{p1} 和 ω_{p2} 的三个纵模泵浦时该系统的量子跃迁过程如图 1 所示。其激光过程可用密度矩阵运动方程描述为:

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{\partial \rho_{jk}}{\partial t} &= \hbar \omega_{jk} \rho_{jk} + [H, \rho]_{jk} - \frac{i\hbar}{\tau_{jk}} \rho_{jk} \\ i\hbar \frac{\partial \rho_{ij}}{\partial t} &= [H, \rho]_{ij} - \frac{i\hbar}{\tau_{ij}} (\rho_{ij} - \rho_{ij}^s) \end{aligned}$$

($j, k = 1, 2, 3; j \neq k$)

其中, τ_{jk} 、 τ_{ij} 分别是分子横向弛豫和纵向弛豫时间; ρ 为密度矩阵, ρ_{jk} 、 ρ_{ij} 分别为其非对角元和对角元; ρ_{ij}^s 为热平衡状态下的 j 能级粒子集居度; H' 为分子系统与激光场相互作用的哈密顿量。经过冗长乏味的求解, 可得三能级系统激光介质增益系数 G_s 和多纵模泵浦信号的吸收系数 G_{p0} 、 G_{p1} 和 G_{p2} 为

$$\begin{aligned} G_s &= \frac{2N_v \mu_s^2 \omega_s T_a}{\epsilon_0 \gamma c \hbar B_s} \text{Im}(P_{12}) - \alpha_s \\ G_{p0} &= \frac{4N_v \mu_s^2 \omega_s T_a}{\epsilon_0 \gamma c \hbar B_{p1}} \text{Im}(P_{130}) - \alpha_{p0} \\ G_{p1} &= \frac{4N_v \mu_s^2 T_a}{\epsilon_0 \gamma c \hbar B_{p1}} (\omega_p + \delta) \text{Im}(P_{131}) - \alpha_{p1} \\ G_{p2} &= \frac{4N_v \mu_s^2 T_a}{\epsilon_0 \gamma c \hbar B_{p2}} (\omega_p + \delta) \text{Im}(P_{132}) - \alpha_{p2} \end{aligned}$$

* 收稿日期: 2003-07-02

基金项目: 广东省自然科学基金资助项目 (021757); 中山大学重点建设高水平大学专项基金资助项目

作者简介: 张迅 (1975 年生), 男, 博士生; 通讯联系人: 罗锡璋; E-mail: isslxz@zsu.edu.cn

其中, N_v 是有效分子数密度, B_s 是远红外信号的 Rabi 频率与横向弛豫时间的乘积, B_{p0}, B_{p1}, B_{p2} 是纵模的泵浦信号的 Rabi 频率与横向弛豫时间的乘积, T_u 是横向弛豫时间, ϵ_0 是真空中介电常数, $\eta = \sqrt{\epsilon/\epsilon_0}$ 是介质除所考虑的跃迁以外的折射率, C 是光速, h 是普朗克常数, ω_s 是信号光频率, ω_p 是泵浦频率, δ 是两个纵模频率之差, $\alpha_s, \alpha_{p0}, \alpha_{p1}, \alpha_{p2}$ 是本底损耗, μ_s, μ_p 是跃迁偶极矩矩阵元, $P_{12}, P_{130}, P_{131}, P_{132}$ 是时间的缓变函数, 是密度矩阵相应的矩阵元素。

1.2 数值迭代求解频谱特性

采用迭代法来数值计算远红外激光的输出光强, 具体地讲就是将样品管平均分成 N 段, 计算从第一段出发, 将第一段输出的 I_{s1} 和 I_{p1} 作为第二段的输入, 如此下去, 将第 k 段输出 I_{sk}, I_{pk} 作为第 $(k+1)$ 段的初始输入信号, 根据公式

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

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

可求出第 $(k+1)$ 段输出的 $I_{s,k+1}$ 和 $I_{p,k+1}$, 其中 z 是沿样品管轴线方向的坐标轴, Δz 是样品管分段的每段长度, 如图 2 所示。显然在数值计算收敛的范围内 Δz 值愈小则计算结果愈准确, 但运算量愈大。由此可以计算出样品管内各处对泵功率的吸收系数和对远红外信号的增益系数, 最后可以计算出激光器的输出功率密度。而第一段的远红外信号为白噪声的远红外信号成分, 多模光泵和多拉曼过程的影响均包含在上述计算中。

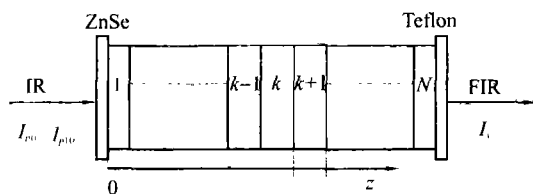


图 2 样品管分段计算示意图

Fig. 2 Sketch of segment calculation of sample tube

2 讨论

我们以 $\text{CO}_2 - 9\text{R}(30)$ 泵浦下 NH_3 分子 $S \rightarrow aP(6,0)$ 跃迁(图 3)为例可计算出图的 spike 现象。

2.1 spike 现象

slope 现象是由于 AC Stark 分裂的双光子过程产生竞争效应, 导致一个 AC Stark 分裂峰比另一个 AC Stark 分裂峰的输出光谱强度大, 再加上激光共振腔输出的纵模频谱特性, 形成所看到的 spike 现象。图 4 是单纵模、双纵模和三纵模光泵激光器的频谱特性曲线, 从图中可以很明显地看到, 随着纵

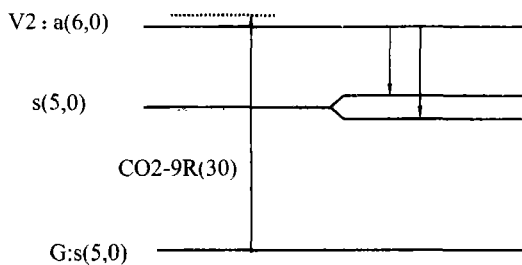


图 3 $\text{CO}_2 - 9\text{R}(30)$ 泵浦下

NH_3 分子 $S \rightarrow aP(6,0)$ 跃迁示意图

Fig. 3 Scheme of the NH_3 molecular transition of $S \rightarrow aP(6,0)$ under $\text{CO}_2 - 9\text{R}(30)$ pumping

模数的增加, spike 现象越来越明显。这是由于每一个纵模都给激光腔注入了更多的能量, 相当于等比例的增加了输出, 所以频谱尖峰就越来越突出。

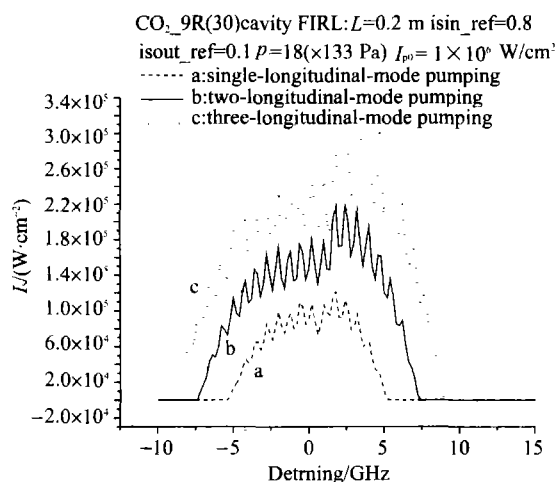


图 4 单纵模、双纵模和三纵模的 spike 现象

Fig. 4 Spike phenomena of single-longitudinal-mode, two-longitudinal-mode and three-longitudinal mode

2.2 工作气压对多纵模光泵激光器频谱特性的影响

如图 5 所示的频谱曲线, 可发现在泵浦功率一定的条件下 ($I_{p0} = 1 \text{ MW/cm}^2$), 当 NH_3 分子工作气压较低时, 例如 $P = 2 \times 133.3 \text{ Pa}$ 时, AC Stark 分裂的双峰裂距约 5 GHz , 频谱曲线很光滑; 当工作气压增大时, $P = 5 \times 133.3 \text{ Pa}$ 时, 开始出现很多小峰, 那是纵模结构的输出光谱; 工作气压继续增加, 由于压力展宽效应, AC Stark 分裂的双峰谱线展宽, 双峰的交迭增大, 频谱中出现尖峰 spike, 交迭增大导致 AC Stark 分裂双峰能量竞争加剧, $P = 10 \times 133.3 \text{ Pa}$ 时, 右边的一个 AC Stark 分裂峰占了竞争的优势, 尖峰 spike 现象开始出现, 并且随着工作气压的增加越来越明显; 在 $P = 20 \times 133.3 \text{ Pa}$ 时, spike 现象达到最明显, 这时; 再继续增加

工作气压, $P = 70 \times 133.3 \text{ Pa}$ 时, 气体分子密度增大, 参与激光过程的分子数也越多, 泵浦激光与远红外激光信号之间的能量交换就越快, 提供给双光子过程的能量就增加, 竞争效应反而减弱, 所以 spike 现象就减弱了; 再增加工作气压, spike 现象就会消失。

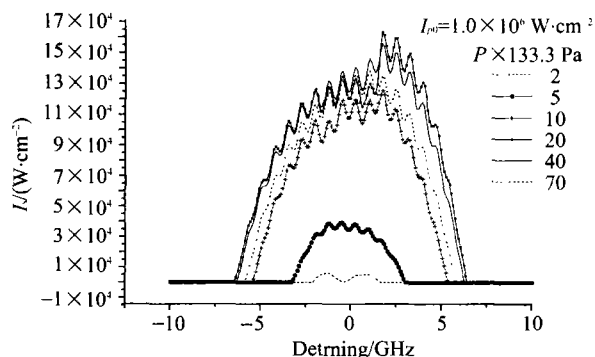


图 5 不同工作气压下的 spike 现象

Fig.5 Spike phenomena under different operation gas pressures

2.3 其它工作参数对频谱特性的影响

我们还做了谐振腔输入、输出功率反射系数和激光管长等其它工作参数对频谱特性影响的计算, 结果表明这些工作参数对 AC Stark 分裂没什么影响, 所以可以一直保持 spike 现象。

3 结 论

综上所述, 我们可以认为光泵 NH_3 分子远红外激光频谱中 spikes 现象的物理根源是 AC Stark 分裂的双光子拉曼过程相互作用加上腔式激光器多纵模输出共同影响的结果。对于 CO_2 -9R(30) 泵浦下的 NH_3 分子 $s \rightarrow aP(6,0)$ 跃迁, 当工作气压较高时, 频谱的 AC Stark 双峰相互交迭增加, 其双光子过程竞争效应增强, 这时腔内各纵模激光获得增强, 从而导致频谱中 spikes 的出现。我们可以把 spikes 当作 AC Stark 分裂的双光子相互作用强弱的一种标志, 当频谱中 spikes 出现且较强时, 说明其双光子相互作用较强。

参考文献:

- [1] QIN J Y, ZHENG X S, LUO X Z, et al. Spike in Raman spectrum of miniature optically pumped NH_3 molecules[J]. Int J IR & MMW, 1996, 17: 1055.
- [2] 郑兴世, 黎耀, 林貽堃, 等. 硅-铝网栅亚毫米波 F-P 干涉仪及其在激光频谱研究中的应用[J]. 红外与毫米波学报, 1993, 12(3): 229-232.

Spike Phenomenon in Raman Spectrum of Optically Pumped Far-infrared Laser

ZHANG Xun, XIAO Dong-mei, HUANG Xiao, CHEN Wei-bin, LUO Xi-zhang

(Department of Electronics & Communication Engineering, Sun Yat-sen University, Guangzhou 510275, China)

Abstract: Based on semi-classical density matrix theory, spike phenomenon in multi-longitudinal-mode CO_2 -9R (30) optically pumped cavity NH_3 molecules laser was studied. The spike phenomenon can be explained as the result of double-photon competition of AC Stark split and the longitudinal-mode from the resonance cavity of laser.

Key words: optically pumped far-infrared laser; spike phenomenon; spectral characteristics