

OPFIRL 中超喇曼过程的 电偶极跃迁增强效应

林貽瑛 杨旭东
(无线电电子学系)

摘 要

利用超喇曼过程,可以获得在一定范围内频率准连续可调的亚毫米波激光;证实在红外一微波双光子泵浦亚毫米波激光的超喇曼过程中存在电偶极跃迁增强效应,利用这种效应,有可能提高超喇曼激光器的效率。

关键词 光泵亚毫米波激光, 超喇曼过程

电偶极跃迁增强效应是超喇曼过程的一种特殊效应,C.Hanna^[1], W. Hartig^[2], C.Y.R. Wu^[3]等人在进行双光子泵浦四波混频产生紫外激光的工作中就已作了预言. 1982年G.D. Willenberg等人^[4]对双光子光泵NH₃分子系统亚毫米波激光的跃迁过程作了比较深入的理论研究,获得了三个相干场与NH₃分子相互作用的光谱特性.为了在理论上研究验证电偶极跃迁增强效应的存在,我们以NH₃分子气体为对象,研究红外一微波双光子泵浦产生亚毫米波激光过程中的电偶极跃迁增强效应,及其谱线和饱和现象。

1 三个相干场与四能级系统的相互作用

在红外一微波双光子泵浦条件下工作的NH₃分子系统,其跃迁过程只涉及4个能级.以NH₃分子的81.5 μm 激光跃迁为例,四能级系统的跃迁能级图如图1所示.其中,振动基态中的转动能级跃迁对应于微波频率,振动激发态中的转动能级跃迁对应于亚毫米波频率,振动态之间的跃迁为红外频率.在红外一微波双光子泵浦作用下,这个四能级系统可能产生从能级1到能级3的超喇曼过程或称三光子过程.当输入微波功率为0时,即只有红外泵浦的情况下,系统内只有从能级2到能级3的喇曼过程.当输入微波信号后,超喇曼过程的跃迁几率增大,当微波功率足够大时,将产生超喇曼过程的亚毫米波激光输出,亚毫米波激光的强度随微波功率的增大而

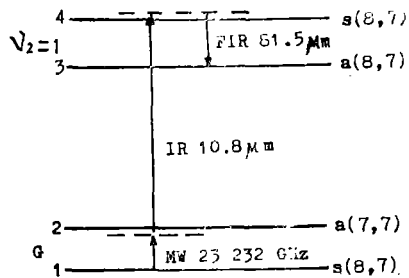


图1 红外一微波双光子泵浦NH₃分子81.5 μm 亚毫米波激光跃迁部分能级图
Fig.1 Partial energy level diagram of IR-MW two-photon pumped NH₃ submillimeter wave laser

本文1989年6月8日收到

加大.

在这种条件下工作的NH₃分子系统, 其跃迁过程服从如下的密度矩阵方程^[5]

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

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

其中, ρ_{ij} 为系统的密度矩阵元, ρ_{jj}^e 为热平衡时能态 $|j\rangle$ 的集居数; $\omega_{ij} = (E_i - E_j)/\hbar$, E_i 是能态 $|i\rangle$ 的本征能量; τ_{jj} 为集居数弛豫时间, $\tau_{ij}(i \neq j)$ 为相位弛豫时间. $H' = -\vec{\mu} \cdot \vec{E}$, $\vec{\mu}$ 为跃迁电偶极矩, \vec{E} 为作用于分子的外电场, 其强度

$$\hat{E} = \frac{1}{2}\hat{E}_p \exp(i\omega_p t) + \frac{1}{2}\hat{E}_s \exp(i\omega_s t) + \frac{1}{2}\hat{E}_m \exp(i\omega_m t) + c.c.$$

包括红外泵浦场 E_p , 微波场 E_m 以及亚毫米波信号场 E_s .

在旋转波近似下, 设密度矩阵方程(1)和(2)有如下尝试解

$$\begin{aligned} \rho_{12} &= P_{12} \exp(i\omega_m t) & \rho_{13} &= P_{13} \exp i(\omega_p + \omega_m - \omega_s)t \\ \rho_{14} &= P_{14} \exp i(\omega_p + \omega_m)t & \rho_{23} &= P_{23} \exp i(\omega_p - \omega_s)t \\ \rho_{24} &= P_{24} \exp(i\omega_p t) & \rho_{34} &= P_{34} \exp(i\omega_s t) \end{aligned}$$

这里, P_{ij} 与时间无关, 且 $P_{ij} = P_{ji}^*$

为简化计算, 在一般情况下, 可以令所有的相位弛豫时间相等, 即 $\tau_{ij} = T_1 (i \neq j, i, j = 1, 2, 3, 4)$, 而集居数弛豫时间 $\tau_{11} = \tau_{22} = T_2$, $\tau_{33} = \tau_{44} = T_3$ ^[6]. 并有 $\omega_m \approx \omega_{21}$, $\omega_p \approx \omega_{42}$, $\omega_s \approx \omega_{43}$.

在动态平衡条件下, 能级的集居度不随时间变化, 即 $\dot{\rho}_{ii} = 0 (i = 1, 2, 3, 4)$. 将上述所有条件代入方程(1)和(2)中, 忽略所有非共振项, 可以得到如下一组与时间无关的关于密度矩阵元的线性方程组. 其中4个对角元方程为

$$\begin{cases} \rho_{11}/T_2 + i(B_m^* P_{12} - B_m P_{12}^*) = \rho_{11}^e/T_2 \\ \rho_{22}/T_2 + i(B_m P_{12}^* + B_p^* P_{24} - B_m^* P_{12} - B_p P_{24}) = \rho_{22}^e/T_2 \\ \rho_{33}/T_3 + i(B_s^* P_{43}^* - B_s P_{43}) = \rho_{33}^e/T_3 \\ \rho_{44}/T_4 + i(B_p P_{24}^* + B_s P_{43} - B_p^* P_{24} - B_s^* P_{43}^*) = \rho_{44}^e/T_3 \end{cases} \quad (3)$$

6个独立的非对角元方程

$$\begin{cases} -L_{12}P_{12}/T_1 + \gamma_{12}B_m + P_{14}B_p^* = 0 \\ -L_{13}P_{13}/T_1 + P_{14}B_s^* - P_{23}B_m = 0 \\ -L_{14}P_{14}/T_1 + P_{12}B_p + P_{13}B_s - P_{24}B_m = 0 \\ -L_{23}P_{23}/T_1 + P_{24}B_s^* - P_{13}B_m^* - P_{43}B_p = 0 \\ -L_{24}P_{24}/T_1 + \gamma_{24}B_p + P_{23}B_s - P_{14}B_m^* = 0 \\ -L_{43}P_{43}/T_1 + \gamma_{43}B_s^* - P_{23}B_p^* = 0 \end{cases} \quad (4)$$

以及上面6个方程的复数共轭方程。

$$\text{其中} \quad \gamma_{ii} = \rho_{ii} - \rho_{jj} \quad B_m = B_m^* = \mu_m E_m / 2\hbar$$

$$B_p = B_p^* = \mu_p E_p / 2\hbar \quad B_s = B_s^* = \mu_s E_s / 2\hbar$$

$$L_{12} = (\omega_{21} - \omega_m)T_1 + i = z + i$$

$$L_{13} = (\omega_{31} + \omega_s - \omega_p - \omega_m)T_1 + i = x + z - y + i$$

$$L_{14} = (\omega_{41} - \omega_p - \omega_m)T_1 + i = x + z + i$$

$$L_{23} = (\omega_{32} - \omega_p + \omega_s)T_1 + i = x - y + i$$

$$L_{24} = (\omega_{42} - \omega_p)T_1 + i = x + i$$

$$L_{43} = -(\omega_{43} - \omega_s)T_1 + i = -y + i$$

$$x = (\omega_{42} - \omega_p)T_1, \quad y = (\omega_{43} - \omega_s)T_1, \quad z = (\omega_{21} - \omega_m)T_1$$

由方程(3)、(4)及其复数共轭方程所组成的方程组,就是反映在红外—微波双光子泵浦条件下,红外、微波和亚毫米波3个相干场与NH₃四能级系统相互作用的密度矩阵方程。

求解上述的联立方程组,获得系统的密度矩阵元 P_{ij} ,再利用系统的量子跃迁与系统的宏观电极化强度关系,由下列公式求得各信号场通过气体分子介质时的增益系数。

$$G_s = -[2N_v |\mu_s|^2 / (\epsilon_0 C \eta \hbar B_s^*)] \omega_s \text{Im}(P_{43}) \quad (5)$$

$$G_p = [2N_v |\mu_p|^2 / (\epsilon_0 C \eta \hbar B_p^*)] \omega_p \text{Im}(P_{24}) \quad (6)$$

$$G_m = [2N_v |\mu_m|^2 / (\epsilon_0 C \eta \hbar B_m^*)] \omega_m \text{Im}(\dot{P}_{12}) \quad (7)$$

这里, G_s 、 G_p 和 G_m 分别是亚毫米波信号、红外泵浦信号和微波信号通过气体介质时的增益系数, N_v 是单位体积内对激射有贡献的工作物质分子数, C 为光速, $\eta = \sqrt{\epsilon/\epsilon_0}$

2 数字计算结果和讨论

对红外—微波双光子泵浦NH₃分子产生81.5 μm 亚毫米波激光辐射(其部分能级图见图1),通过数字计算可以获得系统在红外和微波场的作用下亚毫米波信号的增益特性和调谐特性。

我们在文献[7]中曾给出了如下的参数:

(1)在热平衡条件下,四能级系统中各能级的集居度($T = 300\text{K}$ 时)的百分比分别为

$$\rho_{11}^e = 0.4929, \quad \rho_{22}^e = 0.4911, \quad \rho_{33}^e = 0.0103, \quad \rho_{44}^e = 0.0057.$$

(2) $\mu_s = 0.42D$, $\mu_p = 0.19D$, $\mu_m = 1.22D$

(3) $p = 5\text{Pa}$, $T = 300\text{K}$ 时,参与激光作用的NH₃分子数 N_v 为 7.665×10^{18} 个/ m^3 。

(4)弛豫时间根据文献[6]修正为:

$$T_1 = T_2 = 1/(1.1 \times 10^9 \times P), \quad T_3 = 1/(0.19 \times 10^9 \times P)$$

P 为工作气体压强(Pa)。

在工作气体压强为 5 Pa，红外泵浦功率为 20 W/cm²，微波功率为 1 W/cm² 的工作条件下，如果红外泵浦频偏为 $\Delta f_p = 20$ MHz，则亚毫米波信号随微波频率变化的调谐特性如图 2 所示。

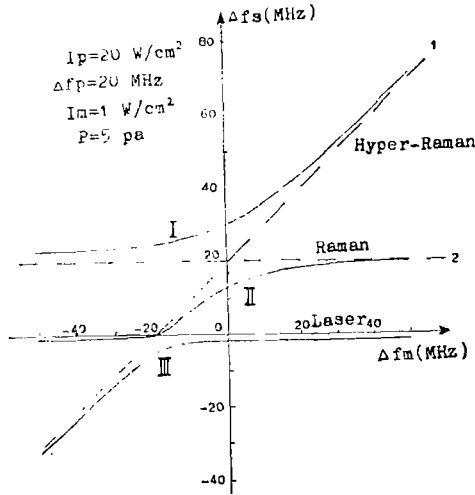


图 2 红外-微波双光子泵浦亚毫米波 激光的调谐特性
Fig. 2 Tuning characteristic of IR-MW two-photon pumped SMM laser

根据各种跃迁过程的性质，可以知道图 2 中虚线 1 符合超喇曼过程的频率特征。由于各种激光过程的相互作用，使增益调谐曲线发生变形和分裂，从而形成了图中所示的 I、II 和 III 3 条调谐曲线。考虑各条调谐曲线的增益特性，超喇曼过程的频率可调范围 $\Delta f_s \leq |\Delta f_p| + 2\Delta$ ， Δ 为红外泵浦场 AC Stark 效应引起的谱线偏移量。

如果只改变微波功率 I_m 的大小，而其他条件保持不变，则在一定的微波频偏范围内，随着微波功率的增大，系统对亚毫米波信号的增益将有较大的提高，从而可能使亚毫米波激光输出增大，这就是电偶极跃迁增强效应。图 3 是微波功率分别为 1 W/cm² 和

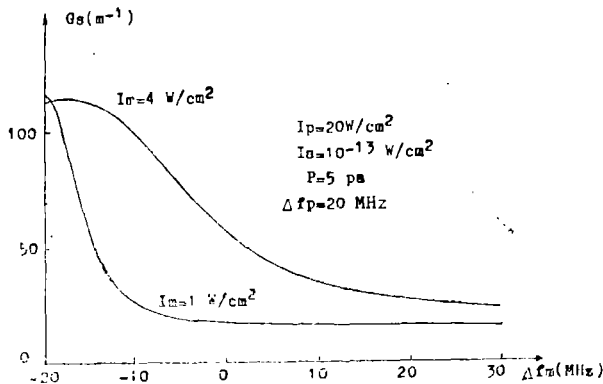


图 3 不同的微波输入强度下亚毫米波信号的增益特性
Fig. 3 The SMMW gain characteristics vs microwave frequency detuning with different MW power density I_m

4W/cm²时的两条亚毫米波增益特性。从图中可见,在 $\Delta f_m = -8$ MHz处,电偶极跃迁增强效应最为显著,微波功率从1W/cm²增加到4W/cm²时,亚毫米波信号的增益从23m⁻¹增大到110m⁻¹,增加了近5倍。由于微波场的AC Stark效应,微波信号功率的不同,将导致亚毫米波信号频率不同(见图4),并影响系统对红外激光的吸收和多光子跃迁几率,从而改变了系统对亚毫米波信号的增益。因此,电偶极跃迁增强效应也随微波功率的改变

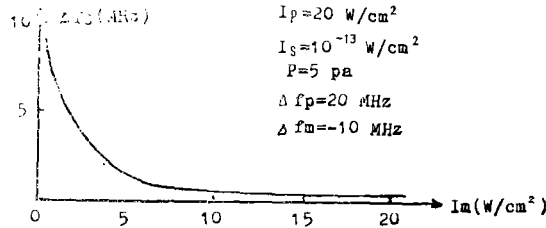


图4 微波信号强度引起的亚毫米波信号的谱线频率偏移

Fig. 4 Deviation of SMMW line center frequency due to change of microwave power density

变而改变。图5给出了不同的微波功率下的电偶极跃迁增强效应,从图中可见,当 $I_m < 4$ W/cm²时,曲线的斜率较大,表示每增加单位强度的微波功率所得到的亚毫米波信号增益的提高了的倍数较大,即电偶极跃迁增强效应比较明显。当 $I_m > 6$ W/cm²时电偶极跃迁增强效应随 I_m 的增加逐渐减小。这表明,微波功率作为超喇曼过程中泵浦的一部,它也具有一个最佳值。这时电偶极跃迁增强效应仍存在,但不是处于优势。

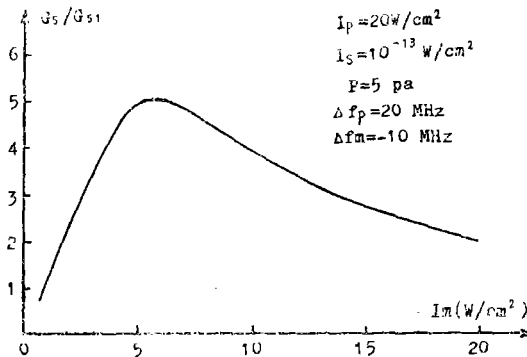


图5 电偶极跃迁增强效应随微波功率的变化

Fig. 5 The dependence of electric dipole moment enhancement effect on the increase of microwave pumping power density

3 结 语

本文探讨了实现以连续波输出的频率准连续可调的亚毫米波激光的可能性以及提高其效率的方法,得到了如下的结论:

(1)在以连续波输出的红外—微波双光子泵浦亚毫米波激光中,利用超喇曼过程,改变微波频率,可以实现亚毫米波频率的准连续可调。

(2)利用多光子过程的电偶极跃迁增强效应,选择适当的工作条件,可以通过增加微波功率来达到提高超喇曼激光器的效率的目的。但微波功率不能过大,否则不但不能提高激光器的效率,反而会降低其效率。

参 考 文 献

- [1] Hanna C et al., *Nonlinear optics of free atoms and molecules*, Springer Verlag, Berlin, New York, 1979
- [2] Hartig W, *Appl. Phys.*, 15 (1978), 427
- [3] Wu C Y R et al., *Opt. Commun.*, 50 (1984), 317
- [4] Willenberg G D et al., *IEEE J.*, QE-18 (1982), 2060
- [5] Lin Yikun et al., *Int. J. IR-MM Waves*, 3 (1982), 553
- [6] Shimizu T, *Appl. Phys.*, 21 (1980), 29
- [7] 林贻堃等, 中山大学学报(自然科学版), 1989, 2, 63

Electric Dipole Transition Enhancement Effect of Hyper Raman Process in OPFIRL

Lin Yikun* Yang Xudong

Abstract

The tuning and gain characteristics of infrared-microwave two-photon pumped NH₃ molecular SMMW lasers are studied theoretically. It is shown that a quasi-continuously tunable SMMW signal could be achieved in hyper-Raman lasers and the efficiency of the lasers could be enhanced by utilizing electric dipole transition enhancement effect.

Keywords optically pumped SMMW lasers, hyper-Raman process

*Department of Radio and Electronics