

准连续可调的NH₃分子光泵 亚毫米波激光*

林贻焯 杨旭东

(无线电电子学系)

摘 要

以NH₃分子气体为工作物质,对CO₂激光和微波同时作为泵浦源的光泵亚毫米波激光系统的密度矩阵方程的求解,获得光泵激光器的频率特性和增益特性。理论计算结果表明:利用光泵激光中的超喇曼过程,改变微波频率,可以产生频率准连续可调的亚毫米波信号;利用谱线的压力增宽,调节激光的腔长,改变其纵模频率,也可以获得准连续可调的亚毫米波信号。

关键词 激光,光泵远红外激光

光泵激光能够产生波长从40 μm 到2 mm范围内的几千条激光谱线^[1],为亚毫米波准光技术和亚毫米波系统的研究提供了有效的单色信号源。对亚毫米波波谱的研究,需要一种在一定频谱范围内连续可调的亚毫米波信号源。美国学者Evenson^[2]用两束频率不同的CO₂激光和微波信号合在一起,通过MIM二极管进行差频,获得远红外亚毫米波激光,通过调节微波信号的频率,在一定范围内连续可调。但其效率较低。本文对以NH₃分子气体为工作物质,CO₂激光和微波信号同时作为泵浦源的光泵亚毫米波激光系统进行了理论研究,计算结果表明:利用分子气体激光的非线性特性,可以获得准连续可调的亚毫米波激光。当泵浦功率密度较小时,利用光泵NH₃分子气体中的超喇曼过程^[3],通过调节微波信号的频率,可以获得准连续可调的亚毫米波信号输出。

1 红外-微波双光子泵浦NH₃气体亚毫米波激光

NH₃分子气体系统,在红外和微波双光子泵浦作用下,其内部的量子跃迁假定只限制在部分4能级系统中,其中振动基态的能级跃迁、振动激发态的能级跃迁以及振动态之间的能级跃迁,分别对应于微波频率、亚毫米波频率和红外频率。在红外-微波双光子泵浦作用下,系统中有可能存在着这样的一个过程:处于振动基态的分子,吸收一个微波光子和一个红外光子,然后发射出一个亚毫米波光子,完成从能级1 \rightarrow 2 \rightarrow 4 \rightarrow 3的跃迁,这个过程称为3光子过程或超喇曼过程。超喇曼过程的特点是:① $\nu_{IR} + \nu_{MW} -$

本文1988年4月25日收到

* 国家教委博士点基金资助课题

$\nu_{FIR} = \nu_{31}$, 其中 ν_{31} 是个常量, 所以得 $\Delta\nu_{IR} + \Delta\nu_{MW} = \Delta\nu_{FIR}$, $\Delta\nu_{IR}$, $\Delta\nu_{MW}$ 和 $\Delta\nu_{FIR}$ 分别为红外、微波和亚毫米波光子的频率与相应的能级跃迁频率的差值. ② 红外或微波泵浦功率增加时, 超喇曼过程的跃迁几率将增大, 这就是电偶极跃迁增强效应^[4]. 从①可见, 改变微波的频率, 即改变 $\Delta\nu_{MW}$ 的值, 将使亚毫米波激光的频率产生相应的变化. 利用这一特点来实现亚毫米波信号频率的准连续可调. 而增加微波信号功率, 利用电偶极跃迁增强效应, 则可以大大地提高超喇曼激光器的效率.

本文通过求解分子系统的密度矩阵方程, 计算光泵激光器的频率特性、增益特性和亚毫米波的频率连续可调范围. 光泵NH₃分子气体系统的密度矩阵方程如下

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

$$i\hbar \frac{\partial \rho_{ij}}{\partial t} = \hbar w_{ij} \rho_{ij} + [H', \rho]_{ij} - \frac{i\hbar}{\tau_{ij}} \rho_{ij}$$

其中 $H' = -\vec{\mu} \cdot \vec{E}$

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

$\vec{\mu}$ 为跃迁电偶极矩, \vec{E} 为作用于分子的高频电场强度, 包括红外泵浦电场, 微波泵浦电场和亚毫米波信号电场. 设密度矩阵元的尝试解为

$$\begin{aligned} \rho_{12} &= p_{12} \exp(i\omega_m t) & \rho_{13} &= p_{13} \exp i(\omega_p + \omega_m - \omega_s) t \\ \rho_{14} &= p_{14} \exp i(\omega_p + \omega_m) t & \rho_{23} &= p_{23} \exp i(\omega_p - \omega_s) t \\ \rho_{24} &= p_{24} \exp(i\omega_p t) & \rho_{34} &= p_{34} \exp(i\omega_s t) \end{aligned} \quad (2)$$

这里设 p_{ij} 与时间无关, 且 $p_{ij} = p_{ji}^*$.

在动态平衡条件下, 能级的集居度不随时间变化, 即 $\dot{\rho}_{ij} = 0$ ($i, j = 1, 2, 3, 4$), 将上面的值代入方程(1)和(2)中, 并假定所有的弛豫时间相等, $\tau_{ij} = \tau$, 则可以获得如下的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

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

6 个独立的非对角元方程

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

$$\begin{aligned} -L_{24}P_{24} + \gamma_{24}B_p + P_{23}B_s - P_{14}B_m^* &= 0 \\ -L_{43}P_{43} + \gamma_{43}B_s^* - P_{23}B_p^* &= 0 \end{aligned}$$

以及上面6个方程的复共轭方程。

$$\text{其中} \quad \gamma_{ij} = \rho_{ii} - \rho_{ij} \quad B_m = B_m^* = \frac{\mu_m E_m \tau}{2\hbar}$$

$$B_p = B_p^* = \frac{\mu_p E_p \tau}{2\hbar} \quad B_s = B_s^* = \frac{\mu_s E_s \tau}{2\hbar}$$

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

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

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

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

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

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

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

$$\Delta f_p = (\omega_{42} - \omega_p)/(2\pi), \quad \Delta f_m = (\omega_{21} - \omega_m)/(2\pi), \quad \Delta f_s = (\omega_{43} - \omega_s)/(2\pi)$$

求解由方程(3)和(4)组成的联立方程组,再利用系统的量子跃迁与系统的宏观电极化强度的关系,分别求得受激分子系统对亚毫米波信号的增益系数和对红外和微波泵浦场的吸收系数表达式

$$\begin{aligned} G_s &= \left(\frac{2N_V |\mu_s|^2}{\varepsilon_0 \eta c \hbar B_s^* \tau} \right) (\omega_{43}\tau - y) I_m(P_{34}) \\ G_p &= \left(\frac{2N_V |\mu_p|^2}{\varepsilon_0 \eta c \hbar B_p^* \tau} \right) (\omega_{42}\tau - x) I_m(P_{24}) \\ G_m &= \left(\frac{2N_V |\mu_m|^2}{\varepsilon_0 \eta c \hbar B_m^* \tau} \right) (\omega_{21}\tau - z) I_m(P_{12}) \end{aligned} \quad (5)$$

式中, 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, $\eta = \sqrt{\varepsilon/\varepsilon_0}$ 。

2 数字计算结果

以红外-微波双光子泵浦NH₃分子气体产生81.5μm亚毫米波激光辐射为例,通过求解3个相干场与4能级分子系统相互作用的密度矩阵方程,可以获得系统对亚毫米波信号场的增益特性和频率特性。

从文献可以得到以下参数^[5]:

①参与激光作用的4个能级的能量分别为:

$$\begin{aligned} E_1 &= 531.4885 \text{ cm}^{-1} & E_2 &= 532.2634 \text{ cm}^{-1} \\ E_3 &= 1337.2684 \text{ cm}^{-1} & E_4 &= 1460.0019 \text{ cm}^{-1} \end{aligned}$$

由此可得在热平衡条件下各能级的集居度($T=300\text{K}$ 时), $\rho_{11}^e = 0.4929$, $\rho_{22}^e = 0.4911$,

$$\rho_{33}^e = 0.0103, \quad \rho_{44}^e = 0.0057.$$

②弛豫时间由文献[6]给出：

$$\tau = 1 / (1.1 \times 10^6 \times p), P \text{ 为工作气体压强, 单位为帕 (Pa).}$$

③ $\mu_s = 0.42 \text{ Debye}, \mu_p = 0.19 \text{ Debye}, \mu_m = 1.22 \text{ Debye}.$

④在理想气体近似下，单位体积内NH₃的分子数 $N = P / (kT)$ 。而由文献[5] 得在整个分子系统中，E₁能级的集居数为0.313%，由此可得当 $P = 5 \text{ Pa}, T = 300 \text{ K}$ 时，参与激光作用的NH₃分子数 N_v 为 $7.665 \times 10^{18} \text{ 个/m}^3$ 。

由以上数据，解方程组(3)和(4)，求得 P_{ij} 的值，取其虚部代入(5)中，经数字计算可获得图 1 至图 4 的结果。

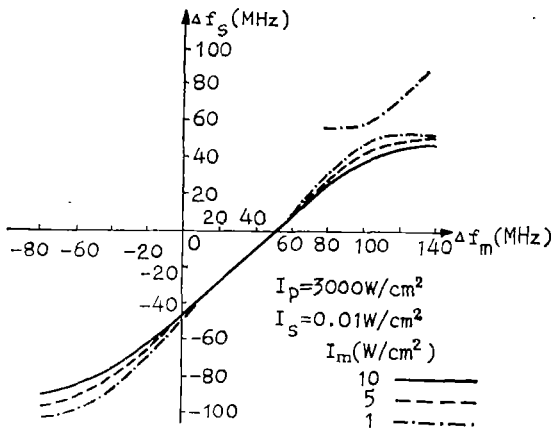


图1 亚毫米波信号的频率调谐曲线
Fig. 1 Tunability of optically pumped NH₃ hyper-Raman laser

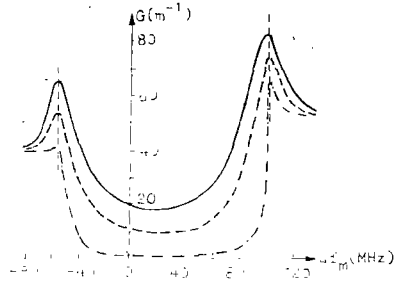


图2 Hyper-Raman 激光的增益特性曲线
Fig. 2 Gain characteristics of optically pumped NH₃ hyper-Raman lasers

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。图 1 是当泵浦功率密度为 3000 W/cm^2 , 泵浦频偏为 -50 MHz 时, 激光器输出亚毫米波信号的频率随微波频率变化的频率调谐曲线。从图 1 可见, 在这条件下, 亚毫米波信号的频率可调宽度约为 150 MHz 。图 2 表示与图 1 相同的系统对亚毫米波信号的增益特性曲线。从图 2 可见当 $\Delta f_m = -20 \sim +60 \text{ MHz}$ 范围内时, 增益系数是较小的, 此时, 微波功率的增大, 将使系统的增益系数有较大的提高, 即利用电偶极跃迁增强效应, 提高超喇曼激光器的效率。另外, 如果激光器采用腔式装置, 即使增益较小,

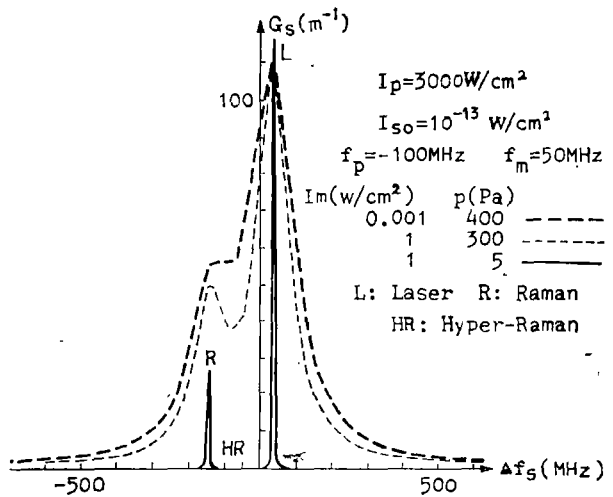


图 3 P < 500 Pa 时, 光泵亚毫米波激光的增益特性
Fig. 3 Lineshape of optically pumped NH₃ laser with low operating gas pressure P = 500 Pa

但亚毫米波信号在腔内来回多次反射多次放大,最后激光器输出的亚毫米波信号强度将是相当大的。

如上所述,利用超喇曼过程可获得连续可调的亚毫米波激光,其可调宽度约为150 MHz,这结果可以进一步修正。为了增加频率可调范围,还采用了固定微波频率、增加激光器工作气体压强、利用压力增宽效应,使激光谱线加宽。在腔式激光系统中,腔起着滤波选频的作用,调节腔的长度,改变腔纵模频率,可以获得较大的频率可调范围。图3和图4分别表示当激光器气体压强 $P < 500 \text{ Pa}$ 和 $P > 1000 \text{ Pa}$ 时系统对亚毫米波信号的增益特性。从这两个图中可以看出,当工作气体压强较大时,谱线的压力加宽将完全覆盖了超喇曼过程的增益,而进一步增大气体压强,甚至连喇曼谱线也变得不明显了,此时系统对亚毫米波信号的增益可以认为主要是激光过程的贡献。这时,可以不加入微波,只用红外激光对 NH_3 分子气体进行泵浦,而对系统的输出没有什么影响。从谱线的形状可见,由于压力增宽效应的结果,调节腔的长度,可以获得1至2 GHz的亚毫米波频率可调范围。

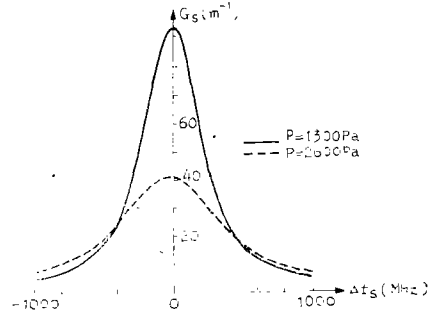


图4 $P > 1000 \text{ Pa}$, 光泵亚毫米波激光的增益特性
Fig.4 Linewidth of optically pumped NH_3 laser with high operating gas pressure

3 结 语

本文通过对光泵 NH_3 分子气体亚毫米波激光的增益特性和频率特性的理论研究,探讨了两种实现频率连续可调亚毫米波激光的方法,得出了如下的结论:

- ①光泵亚毫米波激光,可以利用超喇曼过程的特性,改变微波频率,可以获得130MHz至250MHz宽度的频率连续可调的亚毫米波激光信号。
- ②可以利用超喇曼过程的电偶极跃迁增强效应,提高超喇曼激光器的效率。
- ③腔式光泵 NH_3 分子气体亚毫米波激光器,在高工作气体压强的条件下,可通过调节腔的谐振频率,获得约2GHz的连续可调范围。这时的激光器输出亚毫米波激光的谱线宽度,决定于激光谐振腔的Q值的大小。

参 考 文 献

- [1] Strumia F et al., *7th Int'l. IR-MM Waves Conf. Digest*, 1983, 255
- [2] Evenson K M et al., *11th Int'l. IR-MM Waves Conf. Digest*, 1986, 267
- [3] Will-nberg G D et al., *IEEE J. QE-18*, 1982, 2060
- [4] Wu C Y R et al., *Optics Commun*, 50 (1984), 317
- [5] Malk E G, *Ph. D. dissertation, University of Illinois, Urbana*, 1980
- [6] Shimizu T, *Appl. Phys.*, 21 (1980), 29
- [7] Gerard Piece et al., *IEEE J. QE-23*, 1987, 1388

Quasi-continuously Tunable Optically Pumped NH₃ Molecular SMMW Lasers

Lin Yikun Yang Xuolong*

Abstract

In this paper, the semiclassical density matrix treatment was applied to four-level system for optically pumped NH₃ molecular submillimeter wave (SMMW) lasers, which was pumped by CO₂ laser and microwave simultaneously. The hyper-Raman process in the laser system was studied and the frequency characteristics and gain characteristics were obtained by numerical calculations. It was found that a quasi-continuously tunable SMMW signal could be achieved in the hyper-Raman lasers by tuning the input microwave frequency. In another way, by using pressure broadening effect of the spectrum and the quasi-continuously tunable SMMW signal can also be obtained by increase the operating gas pressure of the laser and adjusting the length of the cavity.

Keywords lasers, optically pumped far infrared lasers

* Department of Radio and Electronics