

光泵远红外激光的多光子增强效应

林貽堃 丘秉生 官蒂 黎耀

(无线电电子学系)

摘 要

本文从理论研究了光泵远红外激光中的多光子过程。我们在解系统的密度矩阵方程时取消了 $I_{\text{FIR}} \ll I_{\text{IR}}$ 的假定。研究结果发现,双光子过程 D_{16} 和三光子过程 T_{34} 同时处于共振的情况下,它们之间的相互作用或相互竞争将是激烈的。当 $B_3 \sim 20$ 时三光子过程 T 的贡献就大为增强,而且在这共同共振点附近 T_{34} 占了优势地位。我们称这现象为多光子增强效应。

从1970年以来,国际上对光泵远红外激光进行过大量实验和理论方面的研究^[1,2],理论研究一般是通过解量子系统中的密度矩阵方程,研究激活物质的量子跃迁过程来解释或预见激光的辐射特性,研究系统中的多光子过程及它们之间的相互作用。远红外激光系统与可见区激光或更短波长的激光的主要差别是:远红外激光是工作物质的振转能级间跃迁产生的受激发射,能级间隔较小,远红外光子能量远小于可见光或紫外光子。因此,在远红外波段解系统的密度矩阵方程时必须考虑的能级数不能只限于三个。考虑的能级数多些,就能揭示系统内更多的物理过程。求解多能级系统的密度矩阵方程是相当繁琐的,所得的结果也是冗长的。为了简化计算,一般在求解过程作了一些假定,特别是小信号假定,即令远红外信号的场强 $E_s \approx 0$ 。这个假定使计算得到很大的简化,但会引起理论计算结果的误差或者丢失一些有用的效应。实际上,在光泵激光器内远红外激光场强是远小于泵浦场强 E_p 的,但在大功率光泵或在有谐振腔存在的条件下远红外信号的场强往往是相当大的。

密度矩阵方程可以借助于计算机求数值解,也可以采用广义信号流图法求解。两种方法在 $E_s \neq 0$ 的情况下都很繁琐,不过后者可以获得解析形式的解,它对预见系统内的各种多光子过程的贡献和它们之间的相互作用具有优越性。

本文主要是研究光泵远红外激光系统在 $E_s \neq 0$ 或 E_s 不很小的情况下,系统内多光子过程及其相互作用,特别是多光子过程相互作用引起的增强效应。由于这效应的存在,使多光子过程的跃迁几率增大,从而对系统的增益将有较大的增强。我们称这效应为多光子增强效应。

本文于1984年8月收到

一、六能级系统中的多光子共振图

我们讨论的光泵远红外激光系统，工作物质的能级结构是振动基态三个转动能级和振动激发态三个转动能级。六能级系统中量子跃迁过程是多种多样的，只有先弄清各种形式的多光子过程的共振条件，然后才有可能预见它们之间的相互作用，进而研究它们对激光系统增益的贡献规律。为此，我们先对六能级系统中可能产生的各种多光子过程进行分类，如图1所示，共有六类跃迁过程： S_{pi} 是泵浦频率单光子吸收过程， S_i 是远红外频率单光子过程， D_{ij} 是远红外双光子吸收过程， D'_{ij} 是红外加远红外双光子吸收， R_{ij} 是喇曼过程， T_{ij} 是三光子过程，即吸收一个泵浦光子同时发射两个远红外光子。根据前人的理论和实验结果^[3]知道，在几个多光子过程同时处于共振的条件下，这些多光子过程将产生比较强烈的相互作用，它们的调谐曲线将产生变形，它们对系统的增益系数的贡献也将发生变化，或者相互削弱，或者相互增强。为了便于寻找几个多光子过程同时产生共振的条件，我们以能级2、5间的跃迁频率 ω_{52} 定为泵浦频率的基准，能级2、3间的跃迁频率 ω_{32} 定为远红外频率的基准。并以这两个频率 ω_{52} 和 ω_{32} 为基准计算频偏： $x = (\omega_{52} - \omega_p)\tau$ 为泵浦频偏， $y = (\omega_{32} - \omega_s)\tau$ 为远红外频偏；其中 ω_p 是泵浦频率， ω_s 是远红外频率， τ 是弛豫时间。按照各种多光子过程产生共振的条件，对于给定的工作物质，我们可以在 $x-y$ 平面上作出表征各种多光子共振过程的曲线，如图2所示，每条曲线表示一种多光子共振过程，即在这曲线上任意一点的 x 和 y 坐标都满足这个多光子过程的共振条件，该图称为多光子共振图，它是一个没有计及多光子过程相互作用的理想调谐曲线。图中曲线的交点表示在该点 x, y 值的条件下有一个以上的多光子过程同时产生共振。应用多光子共振图将十分有利于多光子过程的相互作用的研究。

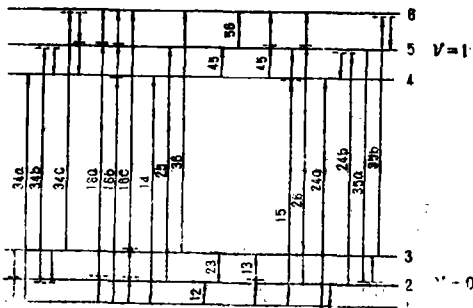


图1 六能级系统中多光子共振跃迁

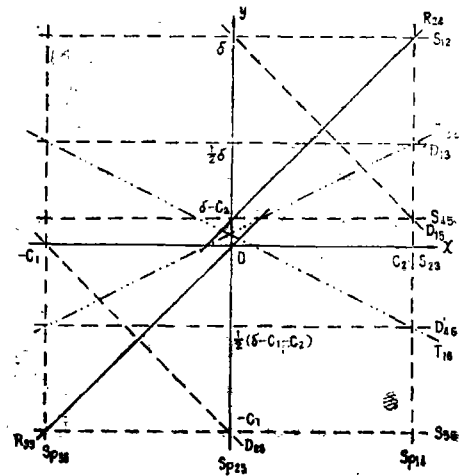


图2 六能级系统中多光子共振图

二、六能级系统密度矩阵方程

系统的密度矩阵方程为：

$$\left. \begin{aligned} ih \frac{\partial \rho_{ii}}{\partial t} &= h\omega_{ii} \rho_{ii} + [H, \rho]_{ii} - \frac{ih}{\tau_{ij}} \rho_{ii} \\ ih \frac{\partial \rho_{ij}}{\partial t} &= [H, \rho]_{ij} + \frac{ih}{\tau_{ij}} (\rho_{jj}^0 - \rho_{ij}) \end{aligned} \right\} \quad (1)$$

把这个方程按六能级系统展开得：

$$\left. \begin{aligned} \rho_{11} &= \rho_{11}^0 - i(B_{21}P_{12} - B_{12}P_{21} + B_{41}P_{14} - B_{14}P_{41}) \\ \rho_{22} &= \rho_{22}^0 - i(B_{12}P_{21} - B_{21}P_{12} + B_{32}P_{23} - B_{23}P_{32} + B_{52}P_{25} - B_{25}P_{52}) \\ \rho_{33} &= \rho_{33}^0 - i(B_{23}P_{32} - B_{32}P_{23} + B_{63}P_{36} - B_{36}P_{63}) \\ \rho_{44} &= \rho_{44}^0 - i(B_{14}P_{41} - B_{41}P_{14} - B_{45}P_{64} + B_{54}P_{45}) \\ \rho_{55} &= \rho_{55}^0 - i(B_{25}P_{25} - B_{52}P_{25} + B_{45}P_{54} - B_{54}P_{45} + B_{65}P_{56} - B_{65}P_{65}) \\ \rho_{66} &= \rho_{66}^0 - i(B_{36}P_{63} - B_{63}P_{36} + B_{56}P_{65} - B_{56}P_{65}) \end{aligned} \right\} \quad (2)$$

这是密度矩阵对角元素方程，其中

$$\left. \begin{aligned} \rho_{21} &= P_{21} e^{-i\omega_s t}; \quad \rho_{32} = P_{32} e^{-i\omega_s t}; \quad \rho_{54} = P_{54} e^{-i\omega_s t}; \quad \rho_{65} = P_{65} e^{-i\omega_s t} \\ \rho_{41} &= P_{41} e^{-i\omega_p t}; \quad \rho_{62} = P_{62} e^{-i\omega_p t}; \quad \rho_{63} = P_{63} e^{-i\omega_p t} \end{aligned} \right\} \quad (3)$$

$$B_{ij} = \begin{cases} \mu_{ij} E_p \tau / 2h & i, j = 1, 4; 2, 5; 3, 6 \\ \mu_{ij} E_s \tau / 2h & i, j = 2, 1; 3, 2; 5, 4; 6, 5 \end{cases}$$

其它部分是密度矩阵非对角元素的方程，它的展开式可参考[1]。

以这些展开式与文献[1]相比较，可以看到由于不假定 $E_s \approx 0$ ，所有方程都不能得到简化。由这组方程可以作出相应的矩阵信号流图，如图3所示。从图3可见，流图的源节点不是 $\rho_{11}, \rho_{22}, \rho_{33}, \rho_{44}, \rho_{55}, \rho_{66}$ ，而是 $\rho_{11}^0, \rho_{22}^0, \rho_{33}^0, \rho_{44}^0, \rho_{55}^0, \rho_{66}^0$ 。这样的信号

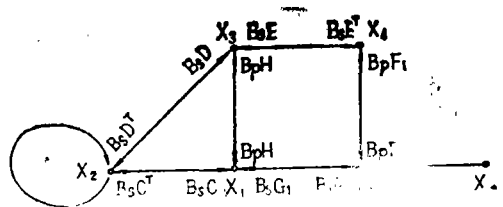


图3 六能级系统中矩阵信号流图

流图便比 $E_s \approx 0$ 时复杂得多，但我们可以采取矩阵信号流图法求解⁽⁴⁾，得出如下结果：

$$\begin{aligned} X_1 &= B_s L_1^{-1} \{ G_1 + [B_p^2 H + B_p B_s^2 C (I - T_3)^{-1} L_3^{-1} (D^T + B_p C^T L_1^{-1} H)] \cdot \\ &\quad \cdot (I - T_2)^{-1} L_2^{-1} (H L_1^{-1} G_1 + E L_4^{-1} F_1) \\ &\quad + [B_s^2 C + B_p B_s^2 H (I - T_2)^{-1} L_2^{-1} (D + B_p H L_1^{-1} C)] \cdot \end{aligned}$$

$$E = \begin{pmatrix} 1 & -1 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 1 & -1 \\ 0 & 1 & -1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 & -1 & 0 \\ 0 & -1 & 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -1 & 1 & 0 \\ -1 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & -1 & 1 \end{pmatrix}$$

$$F_1 = \begin{pmatrix} 1 & 0 & -1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 & -1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & -1 \\ 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & -1 \\ 0 & 1 & 0 & 0 & -1 & 0 \\ 1 & 0 & 0 & -1 & 0 & 0 \end{pmatrix}$$

$$F_2 = \begin{pmatrix} -1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1 \\ 0 & -1 & 0 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & -1 & 1 & 0 & 0 \\ 1 & 0 & 0 & 0 & 0 & -1 \\ 0 & 1 & 0 & 0 & -1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & -1 & 0 & 0 \end{pmatrix}$$

$$G_1 = \begin{pmatrix} 0 & 1 & -1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & -1 & 1 \\ 1 & -1 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -1 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -1 & 1 & 0 \\ 1 & -1 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & -1 & 1 \\ 0 & 1 & -1 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$$

$$G_2 = \begin{pmatrix} 0 & 0 & -1 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 \\ -1 & 0 & 1 & 0 & 0 & -1 & 0 & 1 \\ 1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -1 \\ 0 & 0 & 0 & -1 & 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & -1 & 0 & 1 & -1 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 & -1 & 0 \end{pmatrix}$$

C^T 、 D^T 、 E^T 分别为 C 、 D 、 E 的转置矩阵， I 为单位矩阵。

另外，还可以在式(3)的假定下，用电子计算机直接求得数字解，但数字解很难区分各种多光子过程的贡献。不过，利用多光子共振图我们从 x 和 y 的坐标值就可以估计各种不同多光子过程的出现，从而可区别各种不同的多光子过程对系统增益的贡献以及它们之间的相互作用。系统增益值 G 与 P_{ij} 的关系是

$$G = -\frac{2N_p |\mu_s|^2 \tau}{\epsilon_0 \eta C h B_s^*} \omega_s \text{Im}(P_{21} + P_{32} + P_{54} + P_{65}) \quad (4)$$

其中各物理量的意义可参考文献[1]。

三、六能级系统中多光子增强效应

我们应用计算机求解密度矩阵方程组并借助于图 2，分别求得各种多光子过程的调谐特性和增益特性。利用这些数字计算结果并参考图 2，分别对 T_{34} 和 D_{15} 画出在 $x-y$ 平面上的关系曲线即它们的调谐特性，如图 4 所示。从图中可见，由于多光子过程的相互作用，在 T_{34} 和 D_{15} 理想调谐曲线交点附近， T_{34} 稍有些弯曲变形，而 D_{15} 则变成两部分，说明在这种情况下， T_{34} 三光子过程比 D_{15} 更占优势。而在 R_{35} 与 T_{34} 的交点附近， R_{35} 与 T_{34} 两调谐曲线都分裂为二，说明这两种过程势均力敌。分裂后的两部分调谐曲线，都同时有 R_{35} 和 T_{34} 的贡献。

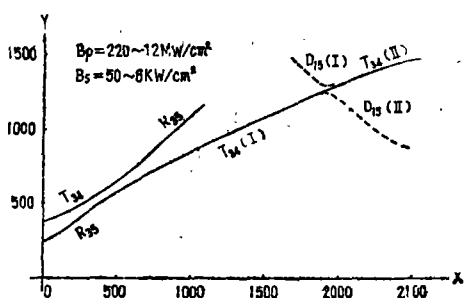


图 4 T_{34} 和 D_{15} 的调谐特性

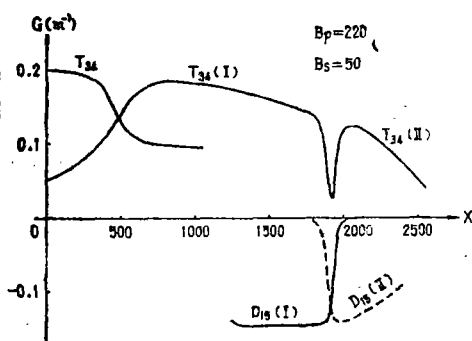


图 5 T_{34} 和 D_{15} 多光子相互增强效应

图 5 表示 T_{34} 和 D_{15} 两个多光子过程的相互作用。从计算所得曲线可见，由于 T_{34} 与 D_{15} 两曲线的交点处 x 的座标离开泵浦频率 $x = 2444$ 有一定距离，所以，这两个多光子过程的跃迁几率都比较低。这两个多光子过程的能级跃迁途径如图 6 所示。从图可见， D_{15} 跃迁将使能级 1 的集居数减少，同时三光子过程 T_{34} 中的泵浦频率接近 ω_{41} ，也使能级 1 的分子集居数减少。能级 1 的集居数的进一步减少，使能级 3 与能级 1 之间的分子集居数产生反转，即能级 3 的分子集居数大于能级 1 的分子集居数。这样，分子系统受泵浦作用的结果将产生受激发射，即从能级 3 到能级 1 的跃迁而发射两个频率约为 $\frac{1}{2}\omega_{31}$ 的远红外光子，因为从能级 3 到能级 1 的跃迁只允许双光子过程的跃迁。

图 5 的曲线是在 T_{34} 和 D_{15} 的交点附近的增益特性曲线。我们把 T_{34} 跃迁的增益特性分为 T_{34I} 和 T_{34II} 两部分， D_{15} 跃迁的增益特性相应地分为 D_{15I} 和 D_{15II} 两部分。可以看到， T_{34} 和 D_{15} 跃迁对系统增益的贡献都比较小，这是因为这两个跃迁都属于高阶过程，而且都比较远离泵浦共振吸收频率。值得注意的是图 5 中 T_{34II} 和 D_{15II} 部分。当 D_{15II} 吸收增大时， T_{34II} 的正增益亦随之增大，这结果从物理观点可作如下分析： D_{15II} 的作用是把分子从能级 1 往

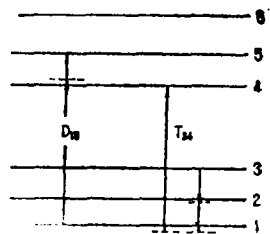


图 6 T_{34} 和 D_{15} 多光子跃迁

能级5和4抽运,而在 $T_{3,4}$ 过程中泵浦的作用也是把分子从能级1往能级4抽运,这样便增强了分子从能级1往高能态跃迁的几率,增加了能级3和1之间的集居数差,从而增强了频率 $\sim \frac{1}{2}\omega_{31}$ 的受激发射。从理论计算又发现,当 B_s 很小时,即系统中远红外信号很小时,这种增强现象比较小。随着 B_s 的增加,这种增强现象将达到一个最优值,当 B_s 超过这最优值继续增加,则这种增强现象又趋减弱。这是由于远红外信号不断增强的过程,是分子从能级3不断向能级1跃迁的过程,再通过泵浦和 $D_{1,6}$ 的作用往高能态抽运以至达到饱和,这时系统对远红外信号的增益和 $D_{1,6}$ 吸收就随之下降。

四、结 论

通过以上对多能级系统的理论计算和跃迁机理的分析,我们可以获得以下几点结论:

1. 在解多能级系统的密度矩阵中,假定 $\bar{B}_s \approx 0$ 可以使密度矩阵方程的解得到很大程度的简化,但这只是一个较粗糙的近似,比较容易失掉较弱效应的信息。

2. 当 $\bar{B}_s \neq 0$ 时,对六能级系统的密度矩阵方程可以采取矩阵信号流图法求得解析形式的解。结果比起 $\bar{B}_s \approx 0$ 的情况要繁琐得多,但它能比较准确而全面地反映系统内多光子过程的物理特性。

3. 多光子共振图对研究多能级系统中的多光子过程是个十分有用的工具,它能粗略地但较全面地反映系统中的多光子过程及它们之间的相互作用。

4. 多光子过程相互作用的结果将使激光随泵浦频率的调谐曲线产生变形,AC Stark效应是多光子过程在工作物质对泵浦处于共振吸收时,喇曼过程与单光子过程相互作用的结果。AC Stark效应使谱线产生分裂,分裂间距为 $\Delta\omega = 2B_p$ 。高阶的多光子过程与单光子过程相互作用的结果也同样使谱线产生分裂; $\Delta\omega = 2B_p/n$,其中 n 是参与多光子过程中的远红外光子数。

5. 多光子过程相互作用的结果有两种可能,一种可能是两个多光子过程互相削弱,如 $D_{2,6}$ 对 $R_{3,6}$ 的作用,其中一个削弱另一个多光子过程使它对系统增益的贡献减小;另一种可能是两个多光子过程相互增强,如 $D_{1,6}$ 对 $T_{3,4}$ 的作用, $D_{1,6}$ 的吸收增强,使 $T_{3,4}$ 对系统增益的贡献也增强,这现象称为多光子增强效应。

6. 多光子增强效应对光泵远红外激光光谱将产生较明显的影响。这效应受输入远红外强度的影响比较敏感。

参 考 文 献

- [1] 林贻堃、官蒂, 光学学报, 2(1982), 3, 210.
Lin Yikun, et al., *International J. of IR and MM Waves*, 3(1982), 4, 553.
林贻堃等, 波谱学报, 1983, 创刊号, 1.
T. Y. Chang and T. J. Bridge, *Opt. Commun.*, 1(1970), 6, 432
R. L. Panoek and R. J. Temkin, *IEEE J. Q. E.*, QE-13(1977), 6, 450.
T. A. DeTemple, *IR and MM Waves*, Vol. 1, Chap. 3, Ed. by K. J. Button,
Academic press, New York, 1979.
H. K. Chung, T. A. DeTemple, *Phys. Rev.*, 22A(1980), 6, 2646.
- [2] P. Mathieu and J. R. Izatt, *Opt. Lett.*, 6(1981), 8, 369.
- [3] 林贻堃等, 光学学报, 5(1984), 406.
- [4] D. E. Riegler and P. M. Lin, *IEEE Trans. on Circuit Theory*, CT-19(1972),
5, 427.

Multiphoton Enhancement of Optically Pumped FIR Lasers

Lin Yikun Qiu Bingsheng Gong Di Li Yao

Abstract

The multiphoton processes in the optically pumped FIR laser system had been studied theoretically. The density matrix equation of the laser system was solved without the assumption of $I_{\text{FIR}} \ll I_{\text{IR}}$. In case of three photon process T_{34} and two photon process D_{16} resonanted simultaneously, they would compete with each other. When $B_S \sim 20$ the contribution of T_{34} to the system gain would be much increased. This was called the multiphoton enhancement effect.