

## · 研究简报 ·

## 光泵远红外激光中多光子过程的饱和效应

宫 蒂 林貽堃

(无线电电子学系)

1970年以来,用红外激光泵浦分子气体,激发其内部的单光子跃迁或喇曼散射过程以产生可调谐的亚毫米波激光的工作不少<sup>[1-5]</sup>.但这方法往往存在红外光泵输出的频率是否与分子气体的振-转能级间隔相匹配的问题.一个解决办法是将样品置入电场中(Laser Stark Spectroscopy),调谐分子能级以达到共振<sup>[6]</sup>.由于Stark效应,受激分子能级因电场干扰发生位移,不能直接测量无微扰分子的能级参数,而且所发出的微波激光频率也会发生移动,故这种方法还不够理想.1976年,T. Oka<sup>[7]</sup>首先制成红外-微波双光子谱仪(Infrared-Microwave Two-Photon Spectroscopy)较好地解决了这个问题.这个方法是对样品同时输入红外及微波两个光泵,利用非线性红外-微波双光子跃迁过程,不仅能精确测量无微扰分子能级参数<sup>[8,9]</sup>,而且在某些条件下,还有可能起着微波量子放大作用<sup>[10]</sup>.近年来,对光泵激光中的多光子过程所进行的理论研究多只限于能级数少于四个,而且不考虑输出激光被反射回头对系统的作用.由于是在红外光泵功率比较低的情形下进行讨论,因此对增益系数比较低的多光子过程的某些特性便表现得不够明显.对六能级分子系统情形,在较大功率红外光泵情况下,考虑到小信号的假设,理论计算结果指出分子内部的某些多光子过程可能相互增强,出现多光子增强效应<sup>[11,12]</sup>.本文将在过去工作的基础上,在较大功率红外光泵作用下,去掉小信号的假设,并考虑到亚毫米波激光信号的反作用,探讨亚毫米波激光信号的强弱对多光子增强效应的影响.结果发现光泵远红外激光中多光子过程的饱和效应不仅明显存在,而且输出信号频率还会出现漂移现象.

## 多光子增强效应及其饱和现象

对六能级分子系统,可用密度矩阵 $\rho_{ij}(i, j = 1, 2, \dots, 6)$ 来描写<sup>[12,13]</sup>.由红外及亚毫米波两激光场的作用结果,产生了分子内部的量子跃迁过程,这过程服从系统的密度矩阵方程

$$\begin{aligned} \dot{\rho}_{jj} &= -\tau^{-1}(\rho_{jj} - \rho_{jj}^0) + (i/\hbar)[\rho, \mathcal{H}]_{jj}, \\ \dot{\rho}_{ij} &= -\tau^{-1}\rho_{ij} + (i/\hbar)[\rho, \mathcal{H}]_{ij}. \end{aligned}$$

本文1984年10月收到

上式中 $\rho_{ij}$ 为密度矩阵元,  $\rho_{ij}^0$ 为平衡态时 $\rho_{ij}$ 的值,  $\tau$ 为弛豫时间,  $\mathcal{H}$ 为系统的哈密顿量, 且 $\mathcal{H}$ 可写为

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_1$$

其中 $\mathcal{H}_0$ 为无外场时系统的哈密顿量,  $\mathcal{H}_1$ 为有外场作用时附加的哈密顿量, 且

$$\mathcal{H}_1 = -\vec{\mu} \cdot \vec{\mathcal{E}}$$

式中 $\vec{\mu}$ 为电偶极矩,  $\vec{\mathcal{E}}$ 为电场强度.

在这种方法描写下, 系统的理想调谐特性可参考六能级系统中的多光子共振图<sup>[12]</sup>. 在图中可见到, 在双光子过程 $D_{15}$ 和三光子过程 $T_{34}$ 的交汇点附近, 由于它们的相互作用而出现多光子增强效应. 过去由于理论本身作了小信号的假设, 忽略了饱和效应, 以致计算结果增益系数过大, 因而出现不完全符合实际的可能性.

为了探讨亚毫米波信号强弱对多光子增强效应的影响, 必须放弃小信号的假设, 而直接借助以电子计算机求解密度矩阵方程的方法<sup>[13]</sup>. 对于 $\text{CH}_3\text{F}$ 分子, 当取分子参数为

$$r_{12}^0 = 0.0431 \quad r_{14}^0 = 0.3714 \quad C_1 = 2470$$

$$r_{23}^0 = 0.04044 \quad r_{25}^0 = 0.3286 \quad C_2 = 2444$$

$$r_{45}^0 = 0.000264 \quad r_{36}^0 = 0.2884 \quad \delta = 3124$$

$$r_{56}^0 = 0.000246 \quad \tau = 10^{-8} \text{秒}$$

时可得亚毫米波的系统增益系数为<sup>[12]</sup>

$$G = -1.311 \times (27.22 - y/1883.65) \times \frac{1}{B_s^*} \text{Im}(P_{21} + P_{32} + P_{54} + P_{65}) \quad (\text{cm}^{-1})$$

通过计算可得一组增益特性曲线, 如图1所示. 从图1中可见, 当红外光泵 $B_p = 200$ (相当功率 $10 \text{ MW/cm}^2$ )比较大时, 取亚毫米波信号 $B_s = 10, 20, 30, 40, 50, 60, 70$ . (相当功率为 $0.288, 1.15, 2.59, 4.61, 7.20, 10.37, 14.12$ , 单位为 $\text{kW/cm}^2$ )的情况下, 亚毫米波的系统增益系数 $G$ 的大小及峰值位置都是不同的. 进一步的计算, 对红外光泵频率在 $x = 1875$ 为较接近 $D_{15}$ 和 $T_{34}$ 的交点 $x = 1856$ 的点及 $x = 1880$ 为偏离交点更远些的点分别作 $G$ 的峰值与 $B_s$ 的关系曲线, 如图2所示. 图2中的两条曲线表现出泵浦频率偏离交点小些的点, 其各峰值位置都高于泵浦频率偏离交点远些的点; 不仅如此, 我们还发现当 $B_s > 20$ 时,  $G$ 的峰值为正, 这时出现多光子增强效应, 而当 $B_s < 20$ 时,  $G$ 的峰值为负, 这时便表现不出多光子增强效应. 更值得注意的是随着 $B_s$ 的增加,  $G$ 的峰值上升为正, 在 $B_s = 40$ 时达到最大, 之后 $G$ 的峰值将逐渐下降, 有明显的饱和现象.

由于多光子过程属于高阶过程, 它对系统增益的贡献要比喇曼过程或单光子过程会小几个数量级, 所以必须在远离其它过程的情况才能排除干扰而表现出来. 从多光子共振图中可见,  $D_{15}$ 和 $T_{34}$ 两过程的交汇点, 即远离其它较强的过程又满足同时共振的条件, 因此多光子增强效应便显示出来了. 双光子过程 $D_{15}$ 和三光子过程 $T_{34}$ 的量子跃迁如图3

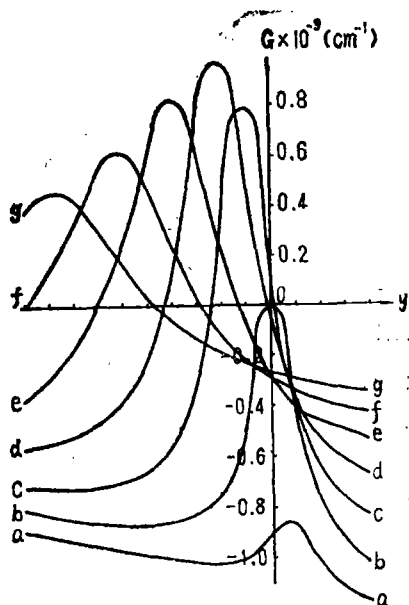


图1 多光子增强效应的增益曲线  
(当 $B_p = 200$ ,  $x = 1875$ ,  $y_0 = 1250$ ,  
 $y$ 间隔为0.5,且 $a, b, c, d, e, f, g$   
分别相应于 $B_s = 10, 20, 30, 40, 50, 60, 70$ )

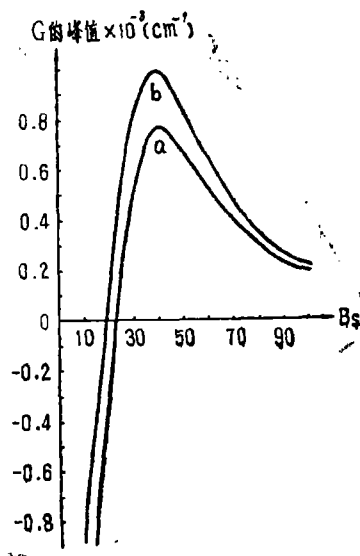


图2  $G$ 的峰值和 $B_s$ 的关系曲线  
(当 $B_p = 200$ , (a) $x = 1880$ , (b)  $x = 1875$ )

所示。从图3中可见到上能级5与下能级1是属于不同振动态的转动能级，所以粒子布居数差很大，双光子吸收过程 $D_{15}$ 的跃迁几率较大，这一跃迁吸收一个红外光子和一个亚毫米波光子，而三光子过程 $T_{34}$ 吸收一个红外光子，发射两个亚毫米波光子，这两个多光子过程存在相互作用。在多光子共振图中， $T_{34}$ 与 $D_{15}$ 的交点处这两过程吸收相同的红外光子，所以在这交点附近，这两个多光子过程的相互作用是强烈的，结果这两过程都得到增强， $T_{34}$ 过程对系统的远红外增益的贡献得到较大的增强，同时 $D_{15}$ 对远红外的吸收也得到增强，这效应称为多光子增强效应。从图1中可见，多光子增强效应受到系统内远红外信号强度的影响很大， $B_s$ 的增加促使效应增强，但 $B_s$ 的数值超过最优值后， $B_s$ 的增加使效应出现饱和现象。

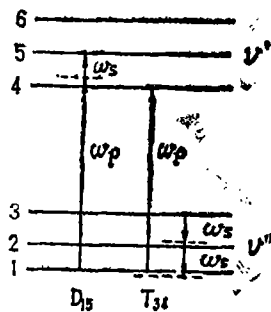


图3  $D_{15}$ 和 $T_{34}$ 的量子跃迁图

通过计算，我们还能得到 $G$ 为峰值时 $y$ 和 $B_s$ 的关系曲线，如图4所示。图中曲线说明由于多光子增强效应，会使亚毫米波输出信号的频率发生漂移，并且随 $B_s$ 的增加，频率漂移现象愈显著。可见系统中远红外场强对 $T_{34}$ 和 $D_{15}$ 相互作用强弱的影响还表现在对辐射远红外光子的频率发生移动。这说明一般多光子过程的相互作用不仅对系统远红外增益产生影响，还使多光子共振曲线发生形变。

**结论**

1. 光泵远红外激光的系统增益受远红外信号强弱的影响比较大。光泵远红外激光理

论的小信号假定是不全面的,使所得结果丢掉了一些有用的信息。

2. 三光子过程 $T_{34}$ 和双光子过程 $D_{15}$ 之间存在相互作用的结果使两者的效应都有增强效应。 $T_{34}$ 对系统远红外增益的贡献增大, $D_{15}$ 对系统远红外的负增益也增大。系统内远红外场强对它们之间的相互作用有相当的影响。

3. 多光子过程普遍都存在饱和现象。

4. 多光子过程光谱的研究必须注意远红外信号的强弱对远红外光谱将产生明显的影响,远红外信号强弱的变动,将使谱线位置产生漂移现象。

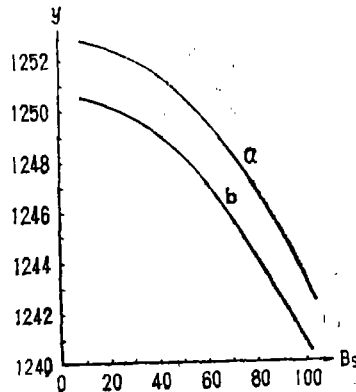


图4  $G$ 的峰值时, $y$ 和 $B_s$ 的关系曲线  
(当 $B_p=200$ , (a) $x=1880$ ,  
(b) $x=1875$ )

### 参 考 文 献

- [1] T. Y. Chang, et. al., *Opt. Commun.*, 1(1970) 6, 432.
- [2] R. J. Temkin, et. al., *Fourth International Conference on Infrared and Millimeter Waves and Their Applications*, 1979, 213.
- [3] T. A. DeTemple, et. al., *Phys. Rev.*, A20(1979), 2, 529.
- [4] Lin Yikun, et. al., *International Journal of Infrared and Millimeter Waves*, 3(1982), 4, 553.
- [5] 林贻堃、官蒂, *光学学报*, 2(1982), 3, 210.
- [6] Y. Ueda, K. Shimoda, *In Laser Spectroscopy*, Springer Verlag, N.Y., 1975.
- [7] S. M. Freund, T. Oka, *Phys. Rev.*, A13, (1976), 2178.
- [8] P. Shoja-Chaghervand, et. al., *J. Mol. Spectrosc.*, 1983, 97, 287.
- [9] P. Shoja-Chaghervand, et. al., *J. Mol. Spectrosc.*, 1983, 98, 27.
- [10] Gerd-Dietmar Willenberg, et. al., *IEEE. J. Quan. Elect*, QE-18(1982) 12, 2060.
- [11] 林贻堃等, *波谱学杂志*, 1(1983), 1, 1.
- [12] 林贻堃等, *光学学报*, 4(1984), 5, 406.
- [13] 官蒂、林贻堃, *中山大学学报(自然科学版)*, 1983, 2, 1.

## Saturation Effect of Multiphoton Processes in Optically Pumped FIR Lasers

Gong Di Lin Yikun

### Abstract

The influence of FIR signal intensity for multiphoton processes in the six-level system has been studied theoretically without the assumption of small signal. We found that the interaction between  $T_{34}$  and  $D_{15}$  led to the enhancement of these two processes. These effects should be saturated when the FIR field strength in the system was large.