

# 光泵远红外激光的频率稳定性与泵浦的关系

林貽堃 丘秉生 宫 蒂

(无线电电子学系)

## 摘 要

本文利用六能级量子系统密度矩阵方程的解析解,分析计算了光泵远红外激光的频率稳定性以及双光子吸收增强三光子共振激射的频率稳定性与泵浦激光质量的关系;比较深入地讨论了AC Stark 效应对远红外激光频率稳定性的影响。

## 一、引 言

光泵远红外激光理论,过去许多学者进行过研究<sup>[1]</sup>。在一些合理的假设下得到的理论结果,可以比较满意地解释实验得到的各种现象:如远红外(FIR)激光频率随泵浦频率变化的可调谐性、调谐特性曲线的中部由于喇曼散射过程和双光子吸收过程竞争而产生的极窄的下陷现象等。本文作者在以前研究工作的基础上<sup>[2]</sup>,应用密度矩阵方程的解析解,分析了光泵远红外激光频率稳定性和双光子吸收增强三光子共振激射的频率稳定性与泵浦激光质量的关系。

我们采用信号流图法解六能级量子系统的密度矩阵方程,在一些合理的假设下,得到如下的解析形式的解:

系统单位长度的增益 $G$ 为

$$G = -\frac{2N_1|\mu_s|^2\tau}{\epsilon_0\eta c\hbar B_s^*}\omega_s\text{Im}(P_{21}+P_{32}+P_{54}+P_{65}) \quad (1)$$

其中

$$\begin{aligned} P_{65}+P_{32} = & \frac{B_s^*}{\Delta} \left\{ \left( \frac{r_{23}}{L_{32}} - \frac{r_{56}}{L_{65}} \right) (1-N_1) \right. \\ & + |B_p|^2 (r_{56}+r_{23}) \left( \frac{1}{L_{62}} - \frac{1}{L_{35}} \right) (2-N_1) \frac{1}{L_{65}L_{32}} + |B_p|^2 \left[ \frac{1}{L_{35}} \left( \frac{r_{25}}{L_{25}} - \frac{r_{36}}{L_{36}} \right) \right. \\ & \left. \left. + \frac{1}{L_{62}} \left( \frac{r_{25}}{L_{52}} - \frac{r_{36}}{L_{63}} \right) \right] \left( \frac{1}{L_{66}} + \frac{1}{L_{32}} \right) (1-N_1) \right\} \quad (2) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} P_{21}+P_{54} = & \frac{B_s^*}{\Delta} \left\{ \left( \frac{r_{12}}{L_{21}} - \frac{r_{45}}{L_{54}} \right) (1-N_2) \right. \\ & \left. + |B_p|^2 (r_{45}+r_{12}) \left( \frac{1}{L_{51}} - \frac{1}{L_{24}} \right) (2-N_2) \frac{1}{L_{54}L_{24}} \right. \end{aligned}$$

$$+ |B_p|^2 \left[ \frac{1}{L_{24}} \left( \frac{r_{14}}{L_{14}} - \frac{r_{25}}{L_{25}} \right) + \frac{1}{L_{51}} \left( \frac{r_{14}}{L_{41}} - \frac{r_{25}}{L_{52}} \right) \right] \left( \frac{1}{L_{54}} + \frac{1}{L_{21}} \right) (1 - N_2) \} \quad (3)$$

$$\Delta = 1 - |B_p|^2 \left[ \left( \frac{1}{L_{55}} - \frac{1}{L_{32}} \right) \left( \frac{1}{L_{35}} - \frac{1}{L_{52}} \right) + \left( \frac{1}{L_{34}} - \frac{1}{L_{51}} \right) \left( \frac{1}{L_{54}} - \frac{1}{L_{31}} \right) \right. \\ \left. + \left( \frac{1}{L_{51}} - \frac{1}{L_{24}} \right) \left( \frac{1}{L_{21}} - \frac{1}{L_{54}} \right) \right] \quad (4)$$

$$N_1 = |B_p|^2 \left[ \left( \frac{1}{L_{34}} - \frac{1}{L_{51}} \right) \left( \frac{1}{L_{54}} - \frac{1}{L_{31}} \right) + \left( \frac{1}{L_{51}} - \frac{1}{L_{24}} \right) \left( \frac{1}{L_{21}} - \frac{1}{L_{54}} \right) \right] \quad (5)$$

$$N_2 = |B_p|^2 \left[ \left( \frac{1}{L_{34}} - \frac{1}{L_{51}} \right) \left( \frac{1}{L_{54}} - \frac{1}{L_{31}} \right) + \left( \frac{1}{L_{51}} - \frac{1}{L_{35}} \right) \left( \frac{1}{L_{32}} - \frac{1}{L_{55}} \right) \right] \quad (6)$$

其中 $r_i$ 及 $L_i$ 等的表达式可参考文献[2]。利用这结果便可以进而研究光泵远红外激光的频率稳定性受到系统内多光子相互作用的影响。

## 二、AC Stark 效应

AC Stark 效应是喇曼过程、泵浦吸收和单光子过程相互作用的结果<sup>(2)</sup>，这效应在两个过程共振点附近最为明显。从密度矩阵方程的解(1)–(6)，可看出 $P_{21}$ 、 $P_{32}$ 、 $P_{54}$ 和 $P_{55}$ 均有一公因子 $1/\Delta$ ，这因子对系统增益的贡献在某些情况下起着相当重要的作用。 $1/\Delta$ 作为 $x$ 和 $y$ 的函数( $x = (\omega_{52} - \omega_p)\tau$ 为泵频失谐量， $y = (\omega_{32} - \omega_s)\tau$ 为远红外频率的失谐量)，在 $x-y$ 平面上它有12对极大值，因此就使增益系数 $G$ 也有12对极值；这些极值都成对地出现，有些是正值，有些是负值。作为一个例子，当 $x=0, y \approx 0$ 时，式(4)可简化为

$$\Delta \approx 1 + \frac{|B_p|^2}{L_{32}L_{35}} \quad (7)$$

这因子的极小值将产生系统增益的峰值；但 $1/\Delta$ 是个复数值，它是不能求极值的，但从(1)式可知，求系统增益 $G$ 时是取解的虚部，因此增益 $G$ 还是有极值的，这极值很大程度上取决于 $1/\Delta$ 的分母部份（这时它的分母是实数，分子是复数）。将 $L_{32} = y - i$ 及 $L_{35} = (x - y) + i$ 代入(7)式，可求得 $1/\Delta$ 的极值位于：

$$y = 0, \text{ 和 } y = \pm \sqrt{|B_p|^2 - 1}. \quad (8)$$

其中 $y=0$ 是 $1/\Delta$ 的极小值位置， $y = \pm \sqrt{|B_p|^2 - 1}$ 是 $1/\Delta$ 的极大值位置。同理，在 $x-y$ 平面上还有十一个座标位置出现AC Stark现象。可列表如下：

| $x_0$  | $y_0$                    | $y_1$                        | $y_2$                        |
|--------|--------------------------|------------------------------|------------------------------|
| $c_1$  | $-c_1$                   | $-c_1 + c$                   | $-c_1 - c$                   |
| 0      | $-c_1$                   | $-c_1 + c$                   | $-c_1 - c$                   |
| $-c_1$ | 0                        | $+c$                         | $-c$                         |
| $c_2$  | $\delta$                 | $\delta + c$                 | $\delta - c$                 |
| 0      | $\delta - c_2$           | $\delta - c_2 + c$           | $\delta - c_2 - c$           |
| $c_2$  | $\delta - c_2$           | $\delta - c_2 + c$           | $\delta - c_2 - c$           |
| 0      | $\delta$                 | $\delta + c$                 | $\delta - c$                 |
| $c_2$  | $\delta/2$               | $(\delta + c)/2$             | $(\delta - c)/2$             |
| $-c_1$ | $(\delta - c_1 - c_2)/2$ | $(\delta - c_1 - c_2 + c)/2$ | $(\delta - c_1 - c_2 - c)/2$ |
| $c_2$  | $(\delta - c_1 - c_2)/2$ | $(\delta - c_1 - c_2 + c)/2$ | $(\delta - c_1 - c_2 - c)/2$ |
| $-c_1$ | $\delta/2$               | $(\delta + c)/2$             | $(\delta - c)/2$             |

上表中 $(x_0, y_0)$ 为出现Ac Stark效应的点的座标,  $(x_0, y_1)$ 及 $(x_0, y_2)$ 为AC Stark效应分裂后的点的座标, 且 $c = \sqrt{|B_p|^2 - 1}$ ,  $B_p = \mu_p \tilde{E}_p \tau / 2\hbar$ ,  $\delta = (\omega_{32} - \omega_{21})\tau$ ,  $c_1 = (\omega_{65} - \omega_{32})\tau$ ,  $c_2 = (\omega_{64} - \omega_{21})\tau$ . 当 $|B_p|^2 > 1$ 时,  $1/\Delta$ 有两个极大值, 这两个极大值的位置相距为 $\Delta y \approx 2B_p$ , 这就是AC Stark分裂. 当 $|B_p|^2 < 1$ 时, AC Stark分裂消失, 这时在 $y = 0$ 处有一极大值, 所以我们称 $|B_p|^2 = 1$ 为产生AC Stark分裂的阈值归一化Rabi频率. 对工作于1 Torr气压的光泵 $^{12}\text{CH}_3\text{F}$ 分子激光,  $|B_p|^2 - 1$ 相当于泵浦功率为 $259\text{W}/\text{cm}^2$ , 即通过每 $10\text{mm}^2$ 的功率为 $25.9\text{W}$ . 实际上, 当 $x = 0$ 时, 其他 $L_i$ 项对增益系数 $G$ 总是存在一定影响的, 所以按(1)式计算的AC Stark分裂的阈值比 $|B_p|^2 = 1$ 要小. 图1表示 $x = 0$ ,  $y \approx 680$ 附近光泵 $^{12}\text{CH}_3\text{F}$ 分子激光的AC Stark分裂曲线.

从这结果可见, AC Stark分裂的消失并不在 $|B_p|^2 = 1$ , 而是在 $|B_p|^2 \approx 0.7$ , 这表明上面的分析只是近似的. 当 $|B_p|^2 \approx 0.7$ 时, AC Stark分裂消失了, 这并不表明多光子相互作用也消失, 这时多光子相互作用表现为谱线的加宽. 当 $|B_p|^2 > 1$ 时, 谱线峰值位置将明显地随泵浦功率的变化而变化, 这将对远红外频率的稳定产生不良影响.

计算表明, 当 $|B_p|^2 \gg 1$ 且泵浦频率调整到分子气体的共振吸收频率时, AC Stark分裂值有两种: 一种等于 $2B_p$ , 这值已被C.H.Townes及以后的许多学者在光泵亚毫米波激光实验所证明<sup>[3]</sup>, 另一种等于 $B_p$ , 这是属于三光子共振和双光子共振相互作用产生的.

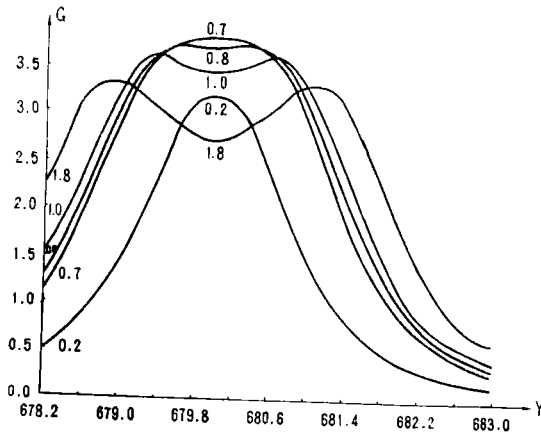


图1 不同 $|B_p|^2$ 值的AC Stark效应( $^{12}\text{CH}_3\text{F}$ , 压强为1 Torr, 在 $x = 0, y \approx 680$ 附近)图中曲线上的数字为 $|B_p|^2$ 的值.

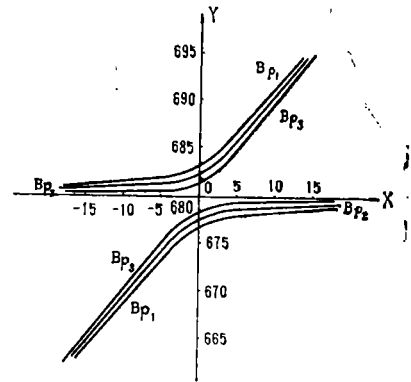


图2 不同泵浦功率下,  $y \sim x$ 调谐曲线的示意图, 图中 $B_{p1} > B_{p2} > B_{p3}$ .

### 三、AC stark效应引起的远红外频率不稳定

在大功率脉冲光泵( $|B_p|^2 \gg 1$ )的情况下, Ac Stark效应对远红外频率稳定性的影响是严重的, 因为这时泵浦功率很难稳定. 所以我们集中研究连续光泵的情况, 如图2所示, 当泵浦功率增加时,  $y \sim x$ 调谐曲线是不重合的. 假设泵浦频率不变, 即 $x$ 的值不变, 当输入泵浦功率不同时, 产生的远红外激光频率将有所不同. 当泵浦频率偏离共振吸收较大, 即 $x$ 较大时, 相同的泵浦功率起伏所引起的远红外输出频率的频率偏移将会少些;

但是 $x$ 大了,系统的增益系数将减少,这对远红外激光的输出功率是很不利的。对光泵 $\text{CH}_3\text{F}$ 分子激光,具体的计算结果示于表1及表2。

表1 不同的 $x$ 值及 $|B_p|^2$ 值下, FIR频偏 $y$ 及增益 $G$ 的计算值

| $x$ | $ B_p ^2$ | FIR频偏 $y$ | 增益系数 $G$   |
|-----|-----------|-----------|------------|
| 0   | 2.001000  | 681.17960 | 3.2746153  |
|     | 2.003001  | 681.18049 | 3.2742896  |
|     | 2.021010  | 681.18839 | 3.2713834  |
|     | 2.101050  | 681.22284 | 3.2589889  |
| 5   | 2.001000  | 685.27760 | 0.72912036 |
|     | 2.003001  | 685.27812 | 0.72966704 |
|     | 2.021010  | 685.28136 | 0.73457485 |
|     | 2.101050  | 685.29572 | 0.75612285 |
| 10  | 2.001000  | 690.14630 | 0.21831104 |
|     | 2.003001  | 690.14650 | 0.21851310 |
|     | 2.021010  | 690.14824 | 0.22033030 |
|     | 2.101050  | 690.15598 | 0.22837700 |
| 15  | 2.001000  | 695.09847 | 0.10098464 |
|     | 2.003001  | 695.09860 | 0.10108219 |
|     | 2.021010  | 695.09978 | 0.10195981 |
|     | 2.101050  | 695.10501 | 0.10585770 |

表2 泵浦功率变化对FIR激光频率的影响

| 泵浦功率变化 | 泵浦频偏 $x$ | $\Delta\omega_s/\omega_s$ |
|--------|----------|---------------------------|
| 0.1%   | 0        | $1.74 \times 10^{-8}$     |
|        | 5        | $1.01 \times 10^{-8}$     |
|        | 10       | $3.90 \times 10^{-9}$     |
|        | 15       | $2.54 \times 10^{-9}$     |
| 1%     | 0        | $1.71 \times 10^{-7}$     |
|        | 5        | $7.33 \times 10^{-8}$     |
|        | 10       | $3.78 \times 10^{-8}$     |
|        | 15       | $2.55 \times 10^{-8}$     |
| 5%     | 0        | $8.43 \times 10^{-7}$     |
|        | 5        | $3.53 \times 10^{-7}$     |
|        | 10       | $1.89 \times 10^{-7}$     |
|        | 15       | $1.27 \times 10^{-7}$     |

为了进一步考察低功率泵浦情况下在共振点附近远红外激光的频率稳定性，我们计算了  $|B_p|^2 = 0.4$  (泵浦功率约  $10.4 \text{ W}/10 \text{ mm}^2$ )、 $x \approx 0$  时光泵  $\text{CH}_3\text{F}$  分子激光的调谐及增益特性曲线，如图3和图4所示。

从图3可见，在共振点  $x \approx 0$  附近，远红外激光频率的变化量  $\Delta y$  随泵浦激光频率的变化量  $\Delta x$  有相同的量级，约  $\Delta y \approx 0.75 \Delta x$ ，这意味着远红外激光的频率稳定度比泵浦激光的频率稳定度要低一个量级。

由图4可见，在  $x \approx 0$  附近，增益特性曲线比较平坦，它将引起远红外激光频率产生无规则的漂移，估计这是多光子相互作用的结

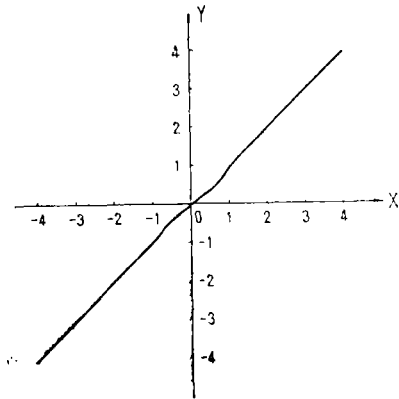


图3 当  $|B_p|^2 = 0.4$  时的  $y \sim x$  调谐曲线 ( $^{12}\text{C}_3\text{HF}$ , 压强为 1 Torr)

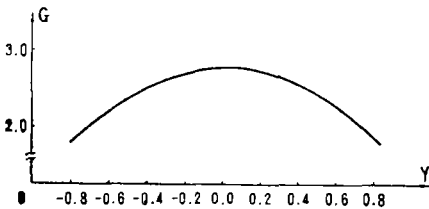


图4 当  $|B_p|^2 = 0.4$  时， $x = -0.0013$  处的共振点附近的增益特性曲线 ( $^{12}\text{CH}_3\text{F}$ , 压强为 1 Torr)

果<sup>[4,5]</sup>。从(8)式的关系知 AC Stark 分裂的临界值是  $|B_p|^2 = 1$ ，已知  $B_p = \mu_p \tilde{E}_p \tau / 2\hbar$ ，其中  $\tau = 1/\pi \Delta \nu$ ，AC Stark 分裂的宽度是  $\Delta \omega_{ac} = 2B_p/\tau$ ，所以 (8) 式结果的实质是 AC Stark 分裂等于谱线的自然宽度  $\Delta \nu$ ，即

$$\Delta \omega_{ac} = \Delta \omega = 2\pi \Delta \nu$$

说明这时多光子相互作用引起的 AC Stark 分裂并不是消失，而是其分裂值小于激光谱线的自然宽度。因此，当泵浦功率较小，即  $|B_p|^2 < 1$  时，多光子相互作用的影响不是使谱线产生分裂，而是使谱线宽度增大，这也使远红外激光的频率稳定度下降。

### 四、双光子吸收增强三光子共振激光的远红外频率稳定性

我们通过理论计算，表明一般三光子共振的跃迁几率是很小的，在大功率 ( $10 \text{ MW}/\text{cm}^2$ ) 泵浦下，系统的增益系数只有  $10^{-3} \text{ cm}^{-1}$  的量级或更小。但当改变泵浦频率到合适的  $x$  值时，有可能同时出现三光子共振跃迁和双光子共振吸收，这两个多光子过程相互作用的结果，使三光子共振跃迁得到很大的增强，从而获得很大的系统增益系数，系统的增益特性曲线如图5。

由图可见，系统的增益特性曲线除喇曼过程外，还增加了三光子过程的贡献，而且增益系数特别大。这结果有如下一些特点：(1) 增益峰值大，当泵浦功率为  $10 \text{ MW}/\text{cm}^2$  时，增益系数可大于 3000。(2) 泵浦频率要求准确，当增益从极大值  $G_{\text{max}}$  降到  $\frac{1}{2}G_{\text{max}}$  时，泵浦频率仅变化  $\Delta \omega_p \tau = 0.01$ ，相当于  $159 \text{ KHz}$ 。(3) 增益系数受泵浦功率影响甚大，泵浦功率减少 4 倍，增益系数减少 62 倍 (从 3551 降为 57)。图5的横坐标是  $y$ ，如果用  $x$  作为横坐标轴，增益特性曲线如图6。

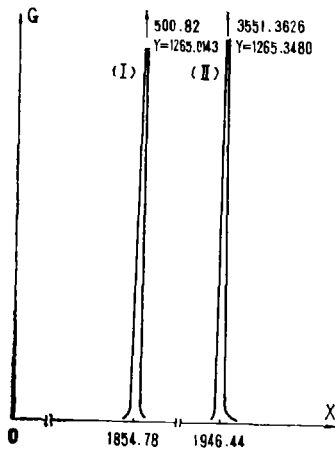


图5 喇曼过程及三光子共振过程的增益特性曲线。

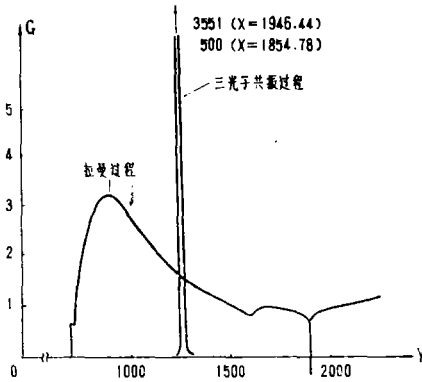


图6 三光子共振过程的G-x特性曲线。  
(<sup>12</sup>CH<sub>3</sub>F.压强为1 Torr, |B<sub>p</sub>|<sup>2</sup>=38600)

由图可见, 在两个不同的x值泵浦下, 输出的远红外激光的频率很接近。计算表明图6中增益峰(I)的远红外激射频率受泵浦功率变化的影响较小, 计算结果列于表3。

表3 泵浦功率变化对三光子共振激射频率及增益G的影响

| B <sub>p</sub>   <sup>2</sup> | x <sub>I</sub> | y <sub>I</sub> | G <sub>I</sub> | x <sub>I</sub> | y <sub>I</sub> | G <sub>I</sub> |
|-------------------------------|----------------|----------------|----------------|----------------|----------------|----------------|
| 38600                         | 1854.78        | 1265.0143      | 500.82         | 1946.44        | 1265.3480      | 3551.3626      |
| 38638                         | 1854.78        | 1265.0139      | 521.33         | 1946.52        | 1265.3431      | 5977.3949      |

上述数据表明, 当用相同的泵浦频率激励, 而泵浦功率变化0.1%时, 对于(I)线, 远红外频率的改变为 $\Delta y = 4 \times 10^{-4}$ , 即 $\Delta\omega_s/\omega_s \approx 7.8 \times 10^{-9}$ ; 对于(II)线,  $\Delta y = 4.9 \times 10^{-3}$ ,  $\Delta\omega_s/\omega_s \approx 9.6 \times 10^{-8}$ 。(关于三光子贡献的机理, 已有专文讨论<sup>[6]</sup>。)

### 五、结 论

1、小功率光泵时, 远红外激光输出频率的不稳定主要是AC Stark效应的作用, 泵浦功率及频率的改变都导致远红外频率的改变。

2、在大功率光泵的情况下, 即 $|B_p|^2 \gg 1$ , 对于特定的泵浦频率, 将出现双光子吸收增强三光子共振激射, 其频率的不稳定性主要来自泵浦功率不稳定。泵浦频率的改变将敏感地引起增益系数的大幅度改变。

3、上面给出的理论结果, 只是对光泵分子激光系统最乐观的估计, 因为它未计及激光器结构本身的各种不稳定因素引起的远红外激光频率的不稳定。

## 参 考 文 献

- [1] A. de.Martino et al., *IEEE J., Quantum Elect.*, QE-16 (1980), 1184.  
L. Panock and R.J. Temkin, *IEEE J., Quantum Elect.*, QE-13 (1977), 425.  
R.Frey, F.Pradere et al., *Opt. Commun.*, 22 (1977), 255.  
P.Mathieu and J.R.Izatt, *Optics Lett.*, 6 (1981), 8, 369.
- [2] 林贻堃, 官蒂, 光学学报, 2 (1982), 3, 210.  
Lin Yikun, Qiu Bingsheng, Gong Di and Guo Bingyin, *Int. J. of Infrared and Millimeter Waves*, 3 (1982), 553.  
林贻堃、丘秉生、官蒂、郭冰莹, 中国电子学会第三届年会论文集, 1982, 111.  
官蒂、林贻堃, 中山大学学报(自然科学版). 1983, 2, 1.
- [3] P. Woskoboinkow et al., *IEEE J., Quantum Elect.*, QE-19 (1983), 4.
- [4] A. Javan, *Phys. Rev.*, 107 (1957), 1579.
- [5] 沈元壤主编, 红外辐射的产生, 科学出版社, 1982, 286.
- [6] 林贻堃、丘秉生、官蒂, 中山大学学报(自然科学版), 1983, 3, 95.

## The Relation between the Frequency Stability of Optically Pumped FIR Laser and the Quality of Pumping Laser

Lin Yikun Qiu Bingsheng Gong Di

### Abstract

The density matrix equations have been solved by considering the active material of laser system as a six-level quantum system. Some theoretical results have been obtained as follows: 1. The influence of AC Stark effect on the frequency stability of optically pumped laser. 2. The dependence of frequency stability of FIR laser upon the pumping power and the pumping frequency stability. 3. The frequency stability of laser lines contributed by multiphoton enhancement.