

# CH<sub>3</sub>F 分子气体中受激喇曼散射的 调谐和增益特性的研究

宫 蒂 林贻堃  
(无线电电子学系)

## 摘 要

本文作者曾以四能级近似方法研究了CH<sub>3</sub>F分子气体的喇曼过程,并得到较好的效果,但尚存在与实验结果不能完全相符的问题。本文从六能级系统考虑进行计算,借助于电子计算机直接求解密度矩阵方程,从而获得一套泵频对讯号频率的调谐曲线和增益曲线。理论结果更加逼近实验结果,揭示了光泵CH<sub>3</sub>F分子气体中的喇曼过程和双光子吸收过程,同时也揭示了当泵频处于共振吸收附近的交流斯塔克效应的贡献。

## 一、引 言

随着远红外亚毫米波激光在各科学领域中应用的发展,对远红外激光连续可调提出越来越高的要求,例如许多光化学过程中只有在大功率的、单色和可调谐激光光源下才能进行<sup>[1-4]</sup>。由于使用的功率比较高,如果用晶体的非线性光学性质产生远红外亚毫米波激光,往往因光泵功率过强而使晶体受损伤,于是便发展了用现有的激光引起的非线性过程以产生新的可调谐的远红外辐射源的想法,其中气体分子的受激喇曼散射过程被认为是产生可调谐的远红外辐射的十分有效的方法。

继光泵远红外激光之后,光泵各种气体分子的受激喇曼散射的实验受到许多学者的重视,理论工作也取得不少成果,例如R. J. Temkin等人在1979年曾对CH<sub>3</sub>F分子气体的受激喇曼散射过程产生远红外辐射做过理论分析,但是由于当时是以三能级分子系统为基础进行讨论的,所以没有得到理想的结果,与实验结果差别也比较大<sup>[5] [10-12]</sup>。本文作者曾对四能级分子系统用直接解密度矩阵方程法和流图方法研究了CH<sub>3</sub>F分子气体的喇曼过程,得到较好的效果,但仍存在与实验结果不能完全相符的问题<sup>[6,7]</sup>。

为了深入细致地探讨CO<sub>2</sub>光泵CH<sub>3</sub>F分子气体的受激喇曼散射的调谐和增益特性,以便从理论上分析利用CO<sub>2</sub>光泵CH<sub>3</sub>F分子气体以产生大功率的、可调谐的远红外激光的现实性与可能性,考虑到过去工作只局限于四能级系统内的跃迁过程,这是理论结果与实验有一定差距的主要原因,所以本文将从六能级分子系统出发,借助于电子计算机直接求解密度矩阵的方程,获得一套泵频对讯号频率的调谐特性曲线和增益特性曲线,理

本文1982年3月收到。

论结果更加逼近实验结果,并揭示了光泵CH<sub>3</sub>F分子气体中的喇曼过程和双光子共振吸收过程,同时揭示了当泵频处于共振吸收附近的交流斯塔克效应的贡献,因而给出了CO<sub>2</sub>光泵CH<sub>3</sub>F分子气体的受激喇曼散射的调谐和增益特性的精细结构。

从本文的结果及分析讨论可见,利用大功率CO<sub>2</sub>激光光泵CH<sub>3</sub>F气体分子产生连续可调的远红外亚毫米波激光是可能实现的。

## 二、密度矩阵方程

为了更详细的研究CO<sub>2</sub>激光光泵CH<sub>3</sub>F分子气体所产生的远红外辐射的调谐和增益特性,我们假定在CO<sub>2</sub>激光照射下CH<sub>3</sub>F分子的受激发射过程只有部份分子参加,而其变化也只限制在六个能级之间变化。

考虑六能级分子系统中的能级结构与跃迁过程如图1所示。在图1中,1,2,3能级是属于振动基态 $v=0$ 的转动能级,而4,5,6能级是属于振动激发态 $v=1$ 的转动能级。当将1,2,4,5能级看做为一组四能级分子系统时,我们将看到在泵频 $\omega_{p1}$ 的作用下2,4,5能级间将产生频率为 $\omega_{s1}$ 的受激喇曼辐射,逐渐改变泵频,在泵频 $\omega_{p2}$ 的作用下1,2,4能级间将产生频率为 $\omega_{s2}$ 的受激喇曼辐射,因而在四能级分子系统中我们就能得到在一定范围内调谐的远红外受激发射。对于2,3,5,6能级看做为另一组四能级分子系统,上述情形同样存在,所不同的只是调谐范围将会不同。这样一来,如果将1,2,3,4,5,6能级一起考虑,我们可以近似地把它看作是两组工作频率不同的四能级系统受激辐射的叠加,于是就能得到在更宽范围内的频率调谐特性和增益特性。但这两组四能级系统中2,5两能级是公共的,显然这两组系统特性就不能是简单的叠加,因为两组四能级系统存在较强的相互作用。

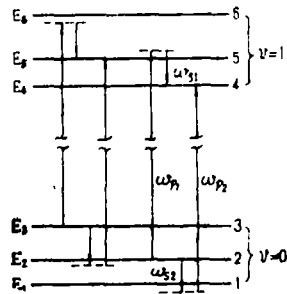


图1 六能级分子系统中的双光子过程

相应于六能级分子系统的密度矩阵 $\rho$ 为 $6 \times 6$ 的厄米矩阵 $\rho_{mn} = \rho_{nm}^*$ ,在不考虑能级有简并的情况下,密度矩阵所应满足的方程为:

$$\dot{\rho}_{mm} = -\tau_{mm}^{-1}(\rho_{mm} - \rho_{mm}^0) + (i/\hbar)[\rho, \mathcal{H}]_{mm},$$

$$\dot{\rho}_{mn} = -\tau_{mn}^{-1}\rho_{mn} + (i/\hbar)[\rho, \mathcal{H}]_{mn}, \quad [注]$$

$$m, n = 1, 2, 3, 4, 5, 6.$$

上式中 $\rho_{mn}$ 为密度矩阵元, $\rho_{mm}^0$ 为平衡态时的 $\rho_{mm}$ 的值, $\tau_{mm}$ 和 $\tau_{mn}$ 为弛豫时间,在计算中假定 $\tau = \tau_{mm} = \tau_{mn}$ , $\mathcal{H}$ 为系统的哈密顿量,并且 $\mathcal{H}$ 可写为

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

$\mathcal{H}_0$ 为无外电场作用时系统的哈密顿量, $\mathcal{H}_1$ 为有外电场作用时附加的哈密顿量,并且

[注] 本文中所有的 $\hbar$ 均为约化普朗克常数, $\hbar = 1.054592 \times 10^{-34} \text{ J}\cdot\text{s}$ 。

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

$\vec{\mu}$  为电偶极矩,  $\vec{\mathcal{E}}$  就是电场强度。

由于我们所考虑的是如图 1 中所示的过程, 因此假定只有如下的电偶极跃迁矩阵元才有贡献, 即

$$\mu_{12} = \mu_{23} = \mu_{45} = \mu_{56} = \mu_s = \mu_s^* ,$$

$$\mu_{14} = \mu_{25} = \mu_{36} = \mu_p = \mu_p^* .$$

而

$$\mu_{13} = \mu_{15} = \mu_{16} = \mu_{26} = \mu_{34} = \mu_{35} = \mu_{46} = \mu_{24} = 0 .$$

并且  $\mu_{11}, \mu_{22}, \mu_{33}, \mu_{44}, \mu_{55}, \mu_{66}$  对所考虑的过程无贡献。

于是我们便得到关于  $\rho_{mm}$  的六个方程和关于  $\rho_{mn}$  的三十个方程, 这三十个方程中有十五个方程和另外的十五个方程是互为共轭的方程。

在求解的时候, 我们只考虑稳定情况下的解, 于是有

$$\dot{\rho}_{11} = \dot{\rho}_{22} = \dot{\rho}_{33} = \dot{\rho}_{44} = \dot{\rho}_{55} = \dot{\rho}_{66} = 0 ,$$

并且可设

$$\mathcal{E} = \mathcal{E}_p e^{i\omega_p t} + \mathcal{E}_p^* e^{-i\omega_p t} + \mathcal{E}_s e^{i\omega_s t} + \mathcal{E}_s^* e^{-i\omega_s t} ,$$

$$\omega_p \approx \omega_{36}, \omega_{25}, \omega_{14} ,$$

$$\omega_s \approx \omega_{65}, \omega_{54}, \omega_{32}, \omega_{21} .$$

其中  $\mathcal{E}_p$  为泵的电场强度,  $\mathcal{E}_s$  为远红外辐射讯号的电场强度,  $\omega_p$  为泵的频率,  $\omega_s$  为讯号的频率,  $\omega_{mn}$  为共振发射频率:

$$\omega_{mn} = (1/h)(E_m - E_n), \quad m, n = 1, 2, 3, 4, 5, 6 .$$

$E_m, E_n$  为  $\mathcal{H}_0$  的本征值, 即无电场作用时系统的能级。

在求解的时候, 我们还考虑取旋转波近似下的解, 即假设

$$\rho_{12} = \tilde{\rho}_{12} e^{i\omega_s t}, \quad \rho_{13} = \tilde{\rho}_{13} e^{i2\omega_s t},$$

$$\rho_{14} = \tilde{\rho}_{14} e^{i\omega_p t}, \quad \rho_{15} = \tilde{\rho}_{15} e^{i(\omega_p + \omega_s) t},$$

$$\rho_{16} = \tilde{\rho}_{16} e^{i(\omega_p + 2\omega_s) t}, \quad \rho_{23} = \tilde{\rho}_{23} e^{i\omega_s t},$$

$$\rho_{24} = \tilde{\rho}_{24} e^{i(\omega_p - \omega_s) t}, \quad \rho_{25} = \tilde{\rho}_{25} e^{i\omega_p t},$$

$$\rho_{26} = \tilde{\rho}_{26} e^{i(\omega_p + \omega_s) t}, \quad \rho_{34} = \tilde{\rho}_{34} e^{i(\omega_p - 2\omega_s) t},$$

$$\rho_{35} = \tilde{\rho}_{35} e^{i(\omega_p - \omega_s) t}, \quad \rho_{36} = \tilde{\rho}_{36} e^{i\omega_p t},$$

$$\rho_{45} = \tilde{\rho}_{45} e^{i\omega_s t}, \quad \rho_{46} = \tilde{\rho}_{46} e^{i2\omega_s t},$$

$$\rho_{66} = \tilde{\rho}_{66} e^{i\omega_s t}.$$

上式中  $\tilde{\rho}_{mn}$  是与时间无关的复数量。

最后我们得到六个对角元方程和十五个非对角元方程如下:

$$\begin{aligned} \gamma_{21} = & \gamma_{21}^0 - 2\beta_s^* \tilde{\rho}_{12} - 2\beta_s \tilde{\rho}_{12}^* - \beta_p^* \tilde{\rho}_{14} - \beta_p \tilde{\rho}_{14}^* \\ & + \beta_s^* \tilde{\rho}_{23} + \beta_s \tilde{\rho}_{23}^* + \beta_p^* \tilde{\rho}_{25} + \beta_p \tilde{\rho}_{25}^*, \end{aligned} \quad (1)$$

$$\begin{aligned} \gamma_{32} = & \gamma_{32}^0 + \beta_s^* \tilde{\rho}_{12} + \beta_s \tilde{\rho}_{12}^* - 2\beta_s^* \tilde{\rho}_{23} - 2\beta_s \tilde{\rho}_{23}^* \\ & - \beta_p^* \tilde{\rho}_{25} - \beta_p \tilde{\rho}_{25}^* + \beta_p^* \tilde{\rho}_{36} + \beta_p \tilde{\rho}_{36}^*, \end{aligned} \quad (2)$$

$$\begin{aligned} \gamma_{41} = & \gamma_{41}^0 - \beta_s^* \tilde{\rho}_{12} - \beta_s \tilde{\rho}_{12}^* - 2\beta_p^* \tilde{\rho}_{14} - 2\beta_p \tilde{\rho}_{14}^* \\ & + \beta_s^* \tilde{\rho}_{45} + \beta_s \tilde{\rho}_{45}^*, \end{aligned} \quad (3)$$

$$\begin{aligned} \gamma_{52} = & \gamma_{52}^0 + \beta_s^* \tilde{\rho}_{12} + \beta_s \tilde{\rho}_{12}^* - \beta_s^* \tilde{\rho}_{23} - \beta_s \tilde{\rho}_{23}^* \\ & - 2\beta_p^* \tilde{\rho}_{25} - 2\beta_p \tilde{\rho}_{25}^* - \beta_s^* \tilde{\rho}_{45} - \beta_s \tilde{\rho}_{45}^* + \beta_s^* \tilde{\rho}_{56} + \beta_s \tilde{\rho}_{56}^*, \end{aligned} \quad (4)$$

$$\begin{aligned} \gamma_{54} = & \gamma_{54}^0 + \beta_p^* \tilde{\rho}_{14} + \beta_p \tilde{\rho}_{14}^* - \beta_p^* \tilde{\rho}_{25} - \beta_p \tilde{\rho}_{25}^* \\ & - 2\beta_s^* \tilde{\rho}_{45} - 2\beta_s \tilde{\rho}_{45}^* + \beta_s^* \tilde{\rho}_{56} + \beta_s \tilde{\rho}_{56}^*, \end{aligned} \quad (5)$$

$$\begin{aligned} \gamma_{65} = & \gamma_{65}^0 + \beta_p^* \tilde{\rho}_{25} + \beta_p \tilde{\rho}_{25}^* - \beta_p^* \tilde{\rho}_{36} - \beta_p \tilde{\rho}_{36}^* \\ & + \beta_s^* \tilde{\rho}_{45} + \beta_s \tilde{\rho}_{45}^* - 2\beta_s^* \tilde{\rho}_{56} - 2\beta_s \tilde{\rho}_{56}^*. \end{aligned} \quad (6)$$

其中

$$\gamma_{mn} = \rho_{mm} - \rho_{nn}, \quad \gamma_{mn}^0 = \rho_{mm}^0 - \rho_{nn}^0,$$

$$\beta_s = (i/\hbar) \tau \mu_s \mathcal{E}_s, \quad \beta_s^* = (-i/\hbar) \tau \mu_s^* \mathcal{E}_s^*,$$

$$\beta_p = (i/\hbar) \tau \mu_p \mathcal{E}_p, \quad \beta_p^* = (-i/\hbar) \tau \mu_p^* \mathcal{E}_p^*,$$

和

$$L_{21} \tilde{\rho}_{12} = \beta_s \gamma_{21} + \beta_s^* \tilde{\rho}_{13} + \beta_p^* \tilde{\rho}_{15} + \beta_p \tilde{\rho}_{24}^*, \quad (7)$$

$$L_{31} \tilde{\rho}_{13} = -\beta_s \tilde{\rho}_{12} + \beta_p^* \tilde{\rho}_{16} + \beta_s \tilde{\rho}_{23} + \beta_p \tilde{\rho}_{34}^*, \quad (8)$$

$$L_{41} \tilde{\rho}_{14} = \beta_p \gamma_{41} + \beta_s^* \tilde{\rho}_{15} + \beta_s \tilde{\rho}_{24}, \quad (9)$$

$$L_{51} \tilde{\rho}_{15} = -\beta_p \tilde{\rho}_{12} - \beta_s \tilde{\rho}_{14} + \beta_s^* \tilde{\rho}_{16} + \beta_s \tilde{\rho}_{25} + \beta_p \tilde{\rho}_{46}, \quad (10)$$

$$L_{61} \tilde{\rho}_{16} = -\beta_p \tilde{\rho}_{13} - \beta_s \tilde{\rho}_{15} + \beta_s \tilde{\rho}_{26} + \beta_p \tilde{\rho}_{46}, \quad (11)$$

$$L_{32}\tilde{\rho}_{23} = \beta_s\gamma_{32} - \beta_s^*\tilde{\rho}_{13} + \beta_p^*\tilde{\rho}_{20} + \beta_p\tilde{\rho}_{30}^* \quad (12)$$

$$L_{42}\tilde{\rho}_{24} = -\beta_p\tilde{\rho}_{12}^* - \beta_s^*\tilde{\rho}_{14} + \beta_s^*\tilde{\rho}_{25} + \beta_s\tilde{\rho}_{34} + \beta_p\tilde{\rho}_{45}^* \quad (13)$$

$$L_{62}\tilde{\rho}_{25} = \beta_p\gamma_{62} - \beta_s^*\tilde{\rho}_{15} - \beta_s\tilde{\rho}_{24} + \beta_s^*\tilde{\rho}_{20} + \beta_s\tilde{\rho}_{35} \quad (14)$$

$$L_{62}\tilde{\rho}_{20} = -\beta_s^*\tilde{\rho}_{10} - \beta_p\tilde{\rho}_{23} - \beta_s\tilde{\rho}_{25} + \beta_s\tilde{\rho}_{30} + \beta_p\tilde{\rho}_{50} \quad (15)$$

$$L_{43}\tilde{\rho}_{34} = -\beta_p\tilde{\rho}_{13}^* - \beta_s^*\tilde{\rho}_{24} + \beta_s^*\tilde{\rho}_{35} + \beta_p\tilde{\rho}_{40}^* \quad (16)$$

$$L_{53}\tilde{\rho}_{35} = -\beta_p\tilde{\rho}_{23}^* - \beta_s^*\tilde{\rho}_{25} - \beta_s\tilde{\rho}_{34} + \beta_s^*\tilde{\rho}_{30} + \beta_p\tilde{\rho}_{50}^* \quad (17)$$

$$L_{63}\tilde{\rho}_{30} = \beta_p\gamma_{60} + \beta_p\gamma_{62} - \beta_p\gamma_{32} - \beta_s^*\tilde{\rho}_{20} - \beta_s\tilde{\rho}_{35} \quad (18)$$

$$L_{64}\tilde{\rho}_{45} = \beta_s\gamma_{64} - \beta_p^*\tilde{\rho}_{15} - \beta_p\tilde{\rho}_{24}^* + \beta_s^*\tilde{\rho}_{40} \quad (19)$$

$$L_{64}\tilde{\rho}_{40} = -\beta_p^*\tilde{\rho}_{10} - \beta_p\tilde{\rho}_{34}^* - \beta_s\tilde{\rho}_{45} + \beta_s\tilde{\rho}_{50} \quad (20)$$

$$L_{65}\tilde{\rho}_{50} = \beta_s\gamma_{65} - \beta_p^*\tilde{\rho}_{20} - \beta_p\tilde{\rho}_{35}^* - \beta_s^*\tilde{\rho}_{40} \quad (21)$$

其中

$$\begin{aligned} L_{21} &= i(\omega_s - \omega_{21})\tau + 1 &&= i(\delta_1 - y) + 1, \\ L_{31} &= i(2\omega_s - \omega_{31})\tau + 1 &&= i(\delta_1 - 2y) + 1, \\ L_{41} &= i(\omega_p - \omega_{41})\tau + 1 &&= i(c_2 - x) + 1, \\ L_{51} &= i[(\omega_s + \omega_p) - \omega_{51}]\tau + 1 &&= i(\delta_1 - x - y) + 1, \\ L_{61} &= i[(\omega_p + 2\omega_s) - \omega_{61}]\tau + 1 &&= i(\delta_1 - c_1 - x - 2y) + 1, \\ L_{32} &= i(\omega_s - \omega_{32})\tau + 1 &&= i(-y) + 1, \\ L_{42} &= i[(\omega_p - \omega_s) - \omega_{42}]\tau + 1 &&= i(c_2 - \delta_1 - x + y) + 1, \\ L_{62} &= i(\omega_p - \omega_{62})\tau + 1 &&= i(-x) + 1, \\ L_{62} &= i[(\omega_p + \omega_s) - \omega_{62}]\tau + 1 &&= i(-c_1 - x - y) + 1, \\ L_{43} &= i[(\omega_p - 2\omega_s) - \omega_{43}]\tau + 1 &&= i(c_2 - \delta_1 - x + 2y) + 1, \\ L_{53} &= i[(\omega_p - \omega_s) - \omega_{53}]\tau + 1 &&= i(-x + y) + 1, \\ L_{63} &= i(\omega_p - \omega_{63})\tau + 1 &&= i(-c_1 - x) + 1, \\ L_{64} &= i(\omega_s - \omega_{64})\tau + 1 &&= i(-c_2 + \delta_1 - y) + 1, \\ L_{64} &= i(2\omega_s - \omega_{64})\tau + 1 &&= i(-c_2 + \delta_1 - c_1 - 2y) + 1, \\ L_{65} &= i(\omega_s - \omega_{65})\tau + 1 &&= i(-c_1 - y) + 1. \end{aligned}$$

而

$$\begin{aligned} c_1 &= (\omega_{65} - \omega_{32})\tau, & c_2 &= (\omega_{64} - \omega_{21})\tau, \\ \delta_1 &= (\omega_{32} - \omega_{21})\tau, & x &= (\omega_{62} - \omega_p)\tau, & y &= (\omega_{32} - \omega_s)\tau. \end{aligned}$$

其中 $x$ 为泵的频率相对于能级( $E_5 - E_2$ )的失谐量,  $y$ 为远红外辐射讯号的频率相对于能级( $E_3 - E_2$ )的失谐量。

另外还有十五个方程是与(7)→(21)共轭的方程。这样一来, 我们便有三十六个方

程与三十六个  $\tilde{\rho}_{mn}$  相对应, 求解以上三十六个方程就能得到描写六能级分子系统的密度矩阵  $\rho$ .

### 三. 电极化率和增益系数

由诱导极化强度

$$\mathcal{P} = N_r \text{Tr}(\mu\rho) = \mathcal{P}(\omega_s) + \mathcal{P}(\omega_p),$$

及  $\mathcal{P}(\omega_s) = \text{Re}[\chi(\omega_s)\mathcal{E}_s e^{i\omega_s t}]$ ,

$$\chi(\omega_s) = \chi'(\omega_s) + i\chi''(\omega_s).$$

对于图1所示的过程, 我们得到<sup>(6)</sup>

$$\frac{\tau \mathcal{E}_s^2}{2\hbar N_r} \chi''(\omega_s) = |\beta_s^*| \text{Im}(\tilde{\rho}_{12} + \tilde{\rho}_{23} + \tilde{\rho}_{45} + \tilde{\rho}_{56}) \quad (22)$$

上式中  $N_r$  为单位体积内参加工作的分子数,  $\mathcal{P}(\omega_s)$  和  $\mathcal{P}(\omega_p)$  分别是将  $\mathcal{P}$  分为与  $\omega_s, \omega_p$  有关的两个部分,  $\chi$  为电极化率, 与  $\omega_s$  有关的部分为  $\chi(\omega_s)$ , 它的实部为  $\chi'(\omega_s)$ , 虚部为  $\chi''(\omega_s)$ .

增益系数与  $\chi''(\omega_s)$  成正比, 从(22)式右边可见, 当系统及电场的参数一定时  $\chi''(\omega_s)$  与泵的频率失谐量  $x$  以及远红外辐射讯号的频率失谐量  $y$  有关. 这样一来, 我们便可从(22)式右边的大小与  $x, y$  的关系来讨论对于图1所示的过程的调谐和增益特性.

### 四. CH<sub>3</sub>F分子气体中受激喇曼散射的调谐和增益特性

对于CH<sub>3</sub>F分子气体, 图1所示的过程具体化为图2所示<sup>(8)</sup>.

从图2中我们可以得到以下的参数:

(1) 设  $\tau = 10^{-8}$  秒, 这是光泵 CH<sub>3</sub>F 激光的典型数值<sup>(8)</sup>, 可算出

$$c_1 = (\omega_{65} - \omega_{52})\tau = 2.46929 \times 10^3,$$

$$c_2 = (\omega_{64} - \omega_{21})\tau = 2.52584 \times 10^3,$$

$$\delta_1 = (\omega_{32} - \omega_{21})\tau = 3.20443 \times 10^3,$$

$$c_2 - \delta_1 = -678.584.$$

将这些值代入  $L_{mn}$  中, 可得  $L_{mn}$  关于  $x, y$  的关系式.

(2) 设  $\rho_{11}^0 = 0.0066$ <sup>(8)</sup>, 可算出

$$\rho_{22}^0 = 5.83923 \times 10^{-3},$$

$$\rho_{33}^0 = 5.12418 \times 10^{-3}, \quad \rho_{44}^0 = 3.85901 \times 10^{-5},$$

$$\rho_{55}^0 = 3.39227 \times 10^{-5}, \quad \rho_{66}^0 = 2.95824 \times 10^{-5},$$

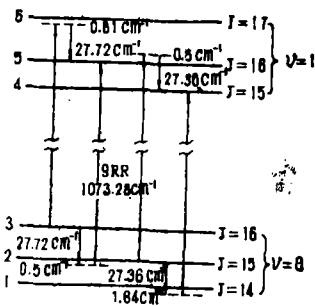


图2 用9R12CO<sub>2</sub>激光泵浦CH<sub>3</sub>F分子产生的FIR发射过程

于是可得  $\gamma_{21}^0, \gamma_{32}^0, \gamma_{41}^0, \gamma_{54}^0, \gamma_{65}^0$  以及单位体积内参加工作的分子数  $Nr$

$$Nr = N \sum_{m=1}^6 \rho_{mm}^0$$

上式中  $N$  为单位体积内的气体分子数目。

(3) 设  $\mu_s = 1.79D, \mu_p = 0.2D^{(8)}$

设泵功率约为  $10\text{MW}/\text{cm}^2$ , 远红外辐射讯号的功率约为  $1\text{KW}/\text{cm}^2$ , 可算出

$$|\beta_s| = 3.58, \quad |\beta_p| = 40.$$

将以上各参数代进(1)→(21)式以及与(7)→(21)式共轭的十五个方程中去, 便得到一组数字系数的、复变量的三十六个方程相应于三十六个  $\tilde{\rho}_{mn}$ 。这组方程便能描写光泵 CH<sub>3</sub>F 分子气体产生远红外辐射的过程。

利用电子计算机求解方程, 并设

$$P = \frac{\tau \mathcal{E}_s^2}{2hNr} \chi''(\omega_s),$$

可得关于

$$P = P(x, y) = 3.58 \text{Im}(\tilde{\rho}_{12} + \tilde{\rho}_{23} + \tilde{\rho}_{46} + \tilde{\rho}_{56}),$$

的一套函数曲线, 如图 3, 图 4, 图 5 所示, 这三幅图就能完全描写出 CH<sub>3</sub>F 分子气体中只考虑六能级情况下的受激喇曼散射的调谐和增益特性。为了便于比较和说明现象我们还做出四能级 CH<sub>3</sub>F 分子气体中受激喇曼散射的调谐和增益特性, 如图 6, 图 7, 图 8 所示, 以及解释当泵频处于共振吸收附近的交流斯塔克效应的图 9。

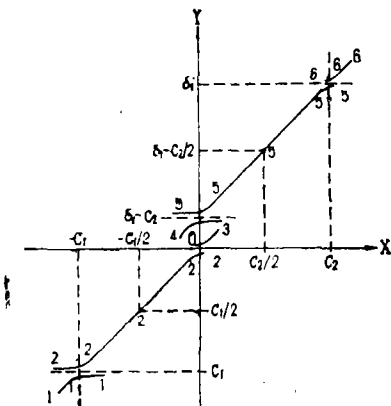


图 3 六能级分子系统中光泵激光的调谐特性

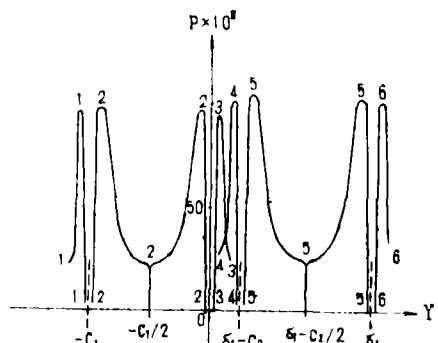


图 4 六能级分子系统中光泵激光的增益特性 ( $P \sim y$  曲线)



## 五. 分析和讨论

### 1. 在泵频共振吸收附近的交流斯塔克效应

首先我们看图 3 所表示的六能级分子系统的调谐特性曲线, 其中在  $x=0, y=0$  附近根据计算结果表明  $\tilde{\rho}_{23}$  对  $\chi''(\omega_s)$  的贡献最大, 而  $\tilde{\rho}_{12}, \tilde{\rho}_{45}, \tilde{\rho}_{56}$  要比  $\tilde{\rho}_{23}$  小两个以上的数量级, 因此在  $x=0, y=0$  附近主要反映振动基态中转动能级  $3 \rightarrow 2$  的跃迁。同样, 在  $x=-c_1, y=-c_1$  附近主要是  $\tilde{\rho}_{56}$  对  $\chi''(\omega_s)$  的贡献最大, 因此主要反映振动激发态中转动能级  $6 \rightarrow 5$  的跃迁。相仿的, 在  $x=c_2, y=\delta_1$  附近相应于  $2 \rightarrow 1$  的跃迁, 在  $x=0, y=(\delta_1-c_2)$  附近相应于  $5 \rightarrow 4$  的跃迁。这四点附近的调谐特性基本上是相近似的, 我们称之为泵频共振吸收附近的交流斯塔克效应。

为了分析这种现象, 我们看图 9 所示的三组曲线。当  $x=0$ , 表示泵频  $\omega_p = \omega_{62}$ , 这时光泵将能级 2 的粒子抽运到能级 5, 使处于 2 的粒子集居数减少, 于是单光子过程  $3 \rightarrow 2$  的跃迁发生了。由于交流斯塔克效应, 输出讯号频率失谐, 在  $y_1 = +40.3$  及  $y_2 = -39.1$  两处各出现峰值, 这种现象就是交流斯塔克频移。当  $x = +50$ , 受激喇曼散射出现, 并且较强, 单光子过程较弱, 于是在  $y_1 = +72.6$  及  $y_2 = -21.0$  两处各出现峰值, 在  $y_1$  处的峰值主要反映受激喇曼散射过程, 在  $y_2$  处的峰值主要反映单光子过程。当  $x = +100$ , 受激喇曼散射现象更强, 在  $y_1 = +114.5$  处的峰值更高, 双光子过程的效果使能级 3 的粒子抽运到能级 5, 而对能级 2 的影响较小, 结果由于能级 3 的集居数减少, 而能级 2 的集居数变化不大, 以致单光子过程不但不是从  $3 \rightarrow 2$  跃迁, 相反  $2 \rightarrow 3$  的单光子跃迁可能发生。这样一来, 在  $y_2 = -13.2$  处出现负峰值, 即出现单光子吸收现象。当  $x = -50$ , 与  $x = +50$  相对称, 在  $y_1 = -71.3, y_2 = +22.4$  两处各出现正峰值,  $y_1$  处峰值较高, 主要反映受激喇曼散射过程。当  $x = -100$ , 与  $x = +100$  相对称, 在  $y_1 = -113.3$  及  $y_2 = +14.4$  两处各出现峰值, 并且在  $y_2 = +14.4$  处为负峰值。

由此可见, 如果我们过 0 点做  $x=y$  直线, 沿直线反映受激喇曼散射过程, 过 0 点做  $y=0$  直线, 沿此直线反映单光子过程。在光泵作用下, 这两种过程相互作用的结果便形成在  $x=0, y=0$  附近的交流斯塔克效应。这种情况在  $x=c_2, y=\delta_1$  处同样可以见到, 因为在这点附近与  $x=0, y=0$  附近相仿都是反映振动基态中转动能级间的跃迁。

上述现象在  $x=-c_1, y=-c_1$  及  $x=0, y=(\delta_1-c_2)$  两处附近同样发生, 所不同的是在我们所讨论的情况下, 4, 5, 6 能级的集居数要比 1, 2, 3 能级的集居数小两个数量级, 于是共振串级跃迁 (resonant cascade transition) 比较容易发生, 而单光子吸收现象相对不那么容易出现, 因此单光子吸收现象在离泵频共振吸收附近较远的地方才可能见到。

### 2. 受激喇曼散射的调谐特性

从上面的讨论可知, 以  $x$  为参变量, 作  $P \sim y$  曲线, 在不同的两个  $y_1, y_2$  处会出现两个峰值, 峰值可能为正或负。如将每一峰值处的  $x$  与  $y$  组成一个点, 将这些点连结起来, 就表现了 CH<sub>3</sub>F 分子气体的受激喇曼散射的调谐特性。为了便于比较, 我们分别作了 CH<sub>3</sub>F

四能级分子的调谐特性曲线如图 6 和  $\text{CH}_3\text{F}$  六能级分子的调谐特性曲线如图 3 所示。

在图 6 中, 我们可以看到, 如果将 1, 2, 4, 5 能级看做一组四能级分子系统, 其调谐特性是右边的一组曲线, 如果将 2, 3, 5, 6 能级看做另一组四能级分子系统, 其调谐特性是左边的一组曲线。这说明如果将  $\text{CH}_3\text{F}$  分子气体近似的认为是四能级分子系统, 那么只能得到分立的调谐特性。

图 3 给出六能级分子系统的调谐特性, 它将图 6 中两组调谐特性连系起来, 并且相对位置十分明确, 图中左下部分相应于 2, 3, 5, 6 四能级中的双光子过程, 图中右上部分相应于 1, 2, 4, 5 四能级中的双光子过程。如果以 2, 3, 5, 6 四能级分子的调谐曲线为参考, 1, 2, 4, 5 四能级分子的调谐曲线坐标原点移至  $(c_2, \delta_1)$  便行了。不过由于这两组四能级系统中 2, 5 能级是公共的, 因而这两组四能级系统互相影响将对系统的特性, 特别是增益特性起着相当作用。计算证明六能级之外的能级的影响是存在的, 但是较小的。

由于  $\text{CH}_3\text{F}$  分子有比较密集的转动能级, 因此依次将  $\text{CH}_3\text{F}$  分子看做为六能级分子系统, 就能了解  $\text{CH}_3\text{F}$  分子的调谐特性的全貌。考虑到在泵频共振吸收附近的交流斯塔克效应, 给出了调谐特性的精细结构, 即由于交流斯塔克效应在泵频率等于共振吸收频率时, 系统的远红外受激发射可能有四个频率。可见, 与四能级分子系统的结果相比, 将  $\text{CH}_3\text{F}$  分子气体考虑为六能级分子系统不仅更接近实际的气体分子。而且使我们对  $\text{CH}_3\text{F}$  分子气体中的受激喇曼散射的调谐特性了解得更详细具体。

### 3. 受激喇曼散射的增益特性

对于一个具有实用意义的激光系统, 较宽的调谐范围应该是以较强的输出增益为前提的, 所以我们必须考虑受激喇曼散射的增益特性。

由于  $P = P(x, y)$ , 对每一个  $P$  的峰值和相应的  $x, y$ , 作出  $P \sim y$  和  $P \sim x$  曲线就能表现  $\text{CH}_3\text{F}$  分子气体中受激喇曼散射的增益特性。图 4 和图 5, 图 7 和图 8 分别为六能级分子系统和四能级分子系统的远红外辐射的增益特性。

首先我们看这几幅图中的共同的部分, 在泵频共振吸收附近, 对于泵频失谐量  $x$  来说总是有输出增益的, 但对于讯号失谐量  $y$  来说输出增益就是不连续的, 这是由于在泵频共振吸收附近有交流斯塔克效应的结果。同时在系统调谐频段的中点都存在带宽为几十  $\text{MHz}$  的下陷, 这是由于双光子吸收过程与喇曼散射过程的相互作用的结果, 例如  $x = c_2/2$  时, 能级  $2 \rightarrow 4$  的喇曼激射远红外频率与能级  $1 \rightarrow 5$  的双光子吸收过程的远红外频率相等, 按计算其跃迁几率亦几乎相等, 两者贡献相抵消, 所以这时系统的增益为很小或负值。这几幅图中  $P$  都取峰值, 但  $x, y$  取不同值时  $P$  却有高低不同。对于某一实际激光系统对增益有一最低要求, 即存在一临界增益。以临界增益值作一条水平的线, 低于这水平线的增益虽然不为 0 或负, 但对系统仍不产生激光起振, 在水平线以上的  $P$  的值所对应的  $x$  或  $y$  的范围才是有实用意义的调谐范围, 在这范围内系统能产生激光振荡。

图 4、5 和图 7、8 的区别在于六能级分子系统中, 2, 3, 5, 6 能级间跃迁的增益, 比起四能级分子系统中 2, 3, 5, 6 能级间跃迁的增益要低约 10%, 而对 1, 2, 4, 5 能级间的跃迁, 四能级分子系统与六能级分子系统的输出增益几乎一样, 同时

比较图7、图8的左右两边发现输出增益也几乎一样,这说明将CH<sub>3</sub>F分子气体看做为四能级分子系统时是看不到这一组和另一组四能级分子系统间的相互作用的,而当将CH<sub>3</sub>F分子气体看做为六能级分子系统时,就能看到两组四能级分子系统间的相互作用,并且1, 2, 4, 5四能级间的双光子过程对于2, 3, 5, 6四能级间的双光子过程影响较强,而2, 3, 5, 6四能级间的双光子过程对1, 2, 4, 5四能级间的双光子过程影响较弱。这种现象可理解为1, 2, 4, 5能级的集居数分别比2, 3, 5, 6能级的集居数大,因此1, 2, 4, 5能级间的双光子过程进行的比较强,以致它对2, 3, 5, 6能级间的双光子过程影响比较大,由于六能级分子系统考虑了上述的影响,所以输出增益下降,使理论计算更逼近实验的结果。同样,如果在能级1下面和能级4下面再考虑多一个能级,考虑多一组四能级间的双光子过程,那么这组四能级间的双光子过程又会使1, 2, 4, 5能级间的双光子过程的输出增益下降。

可见,将CH<sub>3</sub>F分子系统看作六能级分子系统比起将CH<sub>3</sub>F分子系统看作为四能级分子系统从增益特性方面考虑也是更符合实际的。如果将CH<sub>3</sub>F分子系统考虑为八能级分子系统,则中间一组四能级间的双光子过程将受左右两组四能级间的双光子过程的影响,将这些影响都考虑进去,可能得到更理想的结果。

## 六、结 论

(1)从上面的理论和分析讨论出发,我们可以得出结论,利用CO<sub>2</sub>光泵CH<sub>3</sub>F分子气体可能得到大功率、可调范围相当大的远红外亚毫米波激光。

(2)可以通过提高光泵功率的办法提高输出增益的大小,以增加调谐频率复盖和输出功率。

(3)利用直流斯塔克效应,移动能级间的相对位置,使输出增益相对 $x, y$ 移动,以补偿增益特性中不连续之处。

**致谢:** 本工作在计算机使用过程中得到林雨添同志的许多帮助,特此致谢。

## 参 考 文 献

- [1] A. de Martino, R. Frey and F. Pradere, *IEEE J. Quantum Elect.*, QE-16 (1980), 1184.
- [2] R. Frey, F. Pradere and J. Ducuing, *Opt. Commun.*, 23 (1977), 25.
- [3] A. de Martino, F. Pradere and R. Frey, *Opt. Commun.*, 27 (1978), 262.
- [4] A. de Martino, R. Frey, F. Pradere and J. Ducuing, *Infrared Phy.*, 19(1979), 247.
- [5] R. J. Temkin, D. G. Biron, B. G. Danly and B. Lax, Fourth International Conference on IR and MM Waves and Their Applications, Conference Digest, Dec., 1979.
- [6] 宫蒂、林贻堃, 中山大学学报(自然科学版), 1982, 1.
- [7] 林贻堃、宫蒂, 光学学报, 2 (1982), 3.
- [8] T. A. DeTemple, *Infrared and Millimeter Waves*, Vol. 1, Academic Press, 1979.
- [9] R. J. Temkin et al., Fourth International Conference on IR and MM Waves and Their Applications, 1979, P. 232.
- [10] B. Woskoboinikow et al., *J. A. P.*, 50 (1979), 1125.
- [11] Z. Drozdowicz et al., *Appl. Phys. Lett.*, 33 (1978), 154.
- [12] D. G. Biron, Ph. D. Dissertation, M. I. T., 1981.

## Tuning and Gain Characteristics of Stimulated Raman Scattering of CH<sub>3</sub>F Molecular Gas

Gong Di Lin Yikun

### Abstract

The Raman processes in the optically pumped CH<sub>3</sub>F gas laser with four energy-levels approach have been studied and sets of characteristic curves have been obtained. However, it can not be fitted with the experimental results satisfactorily. The lasing gas was supposed to be a six-levels quantum system and the density matrix equations were solved directly with microcomputer. The tuning and gain characteristic curves of optically pumped laser were obtained under various pumping powers. These theoretical results can be conformed by the experimental results. The Raman process and resonant two-photon absorption were presented. The A. C. Stark effect has been revealed under the condition of near resonant absorption of pumping frequency.