

38-42

光泵 NH₃ 分子亚毫米波激光的喇曼 过程相互增强与竞争*

郑兴世 罗锡璋^V 林春光 刘敏 林贻堃

(中山大学电子学系, 广东, 广州, 510275)

A **摘要** 当用强脉冲 CO₂-9R(16)谱线泵浦 NH₃ 分子时, 两个喇曼过程 s→aP(7,0) 和 s→aP(7,1) 相互作用, 导致彼此增强; 而当 CO₂-9R(30)谱线泵浦时, 出现多个喇曼过程的竞争, 一些过程得到增强, 另一些过程被削弱。

关键词 亚毫米波激光器 | 喇曼跃迁过程, 喇曼过程相互作用.

引言

TN248

④ 近几年来, 我们研制成功长度仅有数厘米的小型亚毫米波激光器, 最小的长度仅有 1.5cm 的超小型亚毫米波激光器, 其脉冲输出强度仍可达到 8W/cm² 以上^[1-3]. 随着激光器气体样品管的缩短, 工作气体的最佳压强相应升高. 小型光泵亚毫米波激光器工作气压比常规高许多, 使得激光物理过程变得复杂了. 由于谱线的压强增宽效应, 使得跃迁频率很接近的谱线边缘会出现相互重叠的部分, 这些喇曼过程产生相互作用增强现象^[4-6], 但也可能出现相互竞争现象. 喇曼过程相互作用现象在小型光泵亚毫米波激光器中表现尤其明显, 对这些现象的研究有助于深入了解光泵激光的物理过程, 并且可以改善激光器的性能.

1 理论描述

NH₃ 分子是一种典型的亚毫米波激光工作介质, 它具有十分丰富的红外和远红外激射谱线^[7], 具有较高的振动和转动跃迁强度, 并且对泵浦源有较高的吸收系数, 因而 NH₃ 分子的远红外增益系数比其它的分子要高^[8]. 由于 NH₃ 分子具有反演振动现象, 其能级图具有反演振动分裂的对称特征, 表现为两组间隔十分相近的能级系统, 一组标记为 s, 另一组标记为 a, 而这两组能级之间的交叉跃迁是禁戒的, 图 1(a) 和 (b) 分别给出在 CO₂-9R(16) 泵浦时的部分能级和在 CO₂-9R(30) 泵浦时的部分能级.

考虑一个泵浦产生两个喇曼过程的相互作用时, 可以用一个六能级系统来计算. 这时, 系统的密度矩阵方程是

*国家自然科学基金和博士点基金资助项目
本文 1994 年 12 月 16 日收到, 修改稿 1995 年 4 月 27 日收到

$$i\hbar \frac{\partial \rho_{jk}}{\partial t} = \bar{h}\omega_{jk}\rho_{jk} + [H', \rho]_{jk} - \frac{i\hbar}{\tau_{jk}}\rho_{jk},$$

$$i\hbar \frac{\partial \rho_{jj}}{\partial t} = [H', \rho]_{jj} - \frac{i\hbar}{T}(\rho_{jj} - \rho'_{jj}).$$

其中 $H' = -\mu E(t)$ 是分子系统与激光场相互作用哈密顿量, μ 是分子的跃迁偶极矩, $E(t)$ 是高频电磁场, 可表示为

$$E(t) = \frac{1}{2} E_p \exp[i\omega_p t] + \frac{1}{2} E_s \exp[i\omega_s t] + c. c.$$

其中 E_p 是泵场振幅, ω_p 是泵场的角频率, E_s 是亚毫米波信号场的振幅, ω_s 是其角频率. 通过求解能级系统的密度矩阵方程组, 可以求出泵浦吸收系数和信号增益系数分别为

$$G_p = -\frac{N_v |\mu_{ij}|^2 \tau}{\epsilon \eta \hbar} \omega_p \text{Im}[(P_{15} + P_{26})/B_p],$$

$$G_s = -\frac{N_v |\mu_{ij}|^2 \tau}{\epsilon \eta \hbar} \omega_s \text{Im}[(P_{53} + P_{64})/B_s].$$

其中 N_v 为激光工作分子粒子数密度, ϵ 和 η 是激光介质的介电系数和折光系数, B_p, B_s 为 Rabi 频率, P_{15} 等是矩阵元 ρ_{15} 等的模值, τ 是系数在工作状态下的分子弛豫时间. G_p 和 G_s 可以数值求解, 然后用迭代运算求出该六能级系统的输出亚毫米波的频谱特性. 这个方法可以推广到有多个喇曼过程相互作用的计算.

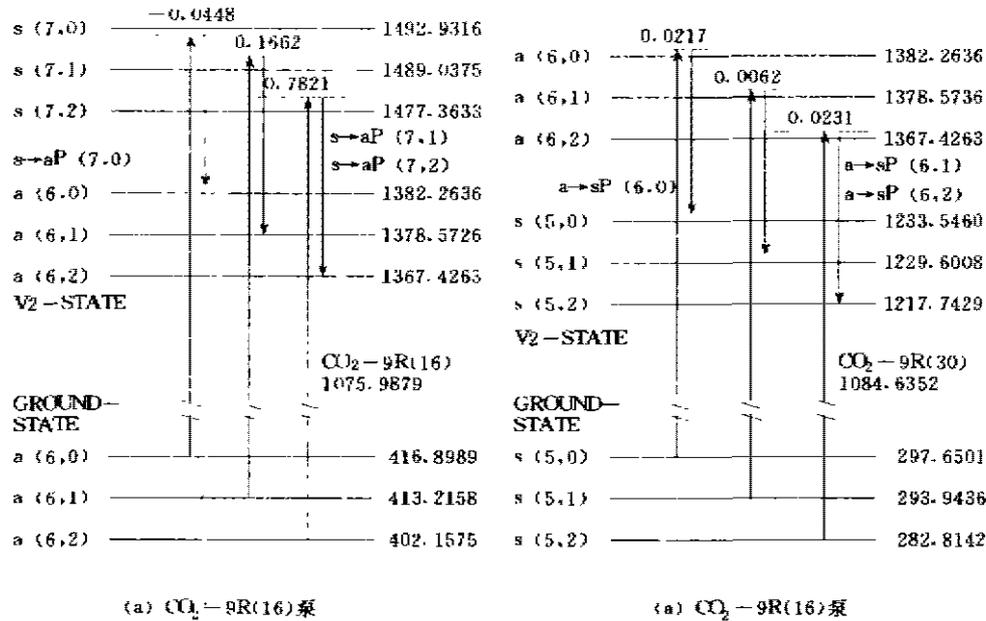


图 1 NH₃ 分子的部份能级图
Fig. 1 Energy level diagram of NH₃ molecules (in part)

1.1 喇曼相互作用增强效应

对一只管长为 10cm 的小型光泵 NH_3 分子亚毫米波激光器, 当用 TEA- CO_2 激光的 9R(16) 线作泵源时(见图 1), 会产生 3 个喇曼过程, 即 $s \rightarrow aP(7,0)$ 、 $s \rightarrow aP(7,1)$ 和 $s \rightarrow aP(7,2)$, 泵频偏分别为 -0.0448 、 0.1662 和 0.7821 cm^{-1} , 辐射的波长在 $90.4 \mu\text{m}$ 附近. 前两个跃迁辐射的中心频率很接近, 频差仅为 238 MHz , 而第三个跃迁辐射的谱线中心频率相对第二条谱线的频差较大, 为 2700 MHz . 在工作气压很低的情况下, 这些谱线宽度较小, 两线频谱交叠部分的场强与本底热噪声相近, 因而不会出现明显的相互作用现象. 而当工作气压升高后, 由于谱线压力增宽, 导致相邻的两条谱线部分交叠, 而使双方的亚毫米波的本底强度显著增加. 例如, 工作气压为 $40 \times 133.3 \text{ Pa}$, 泵场强为 3 MW/cm^2 时, 在 $s \rightarrow aP(7,0)$ 谱线的中心位置, 即 $Y = -1200 \text{ MHz}$, 另一谱线 $s \rightarrow aP(7,1)$ 的场强为 $1.68 \times 10^{-10} \text{ W/cm}^2$, 要比本底热噪声(约为 10^{-13} W/cm^2) 大 10^5 倍; 同时, 在 $s \rightarrow aP(7,1)$ 谱线的中心, 即 $Y = +800 \text{ MHz}$ 处, $s \rightarrow aP(7,0)$ 的场强为 $6.38 \times 10^{-12} \text{ W/cm}^2$, 比本底噪声大 10^{11} 倍. 这些交叠的频谱分量相当于输入信号, 经过激光过程的放大作用而显著增强. 因此, 这两个喇曼过程产生了强烈的相互作用增强效应. 对于 $s \rightarrow aP(7,2)$ 的谱线, 由于离开较远, 而且其泵频偏也较大, 通过计算证明它对输出频谱的影响很小. 图 2 是输出特性的理论计算结果. 由图可见, 输出场强增强而且频谱增宽, 以致把原来独立的几条谱线连成一条宽的谱带.

1.2 喇曼过程的相互竞争

当用 CO_2 -9R(30) 线作为泵源时, 这个系统也可能同时有多个喇曼过程产生. 这些过程的泵频偏都很小, 其中泵频偏最小的 3 个为 $a \rightarrow sP(6,0)$, $\Delta\nu_p = -0.0217 \text{ cm}^{-1}$; $a \rightarrow sP(6,1)$, $\Delta\nu_p = -0.0062 \text{ cm}^{-1}$ 和 $a \rightarrow sP(6,2)$, $\Delta\nu_p = -0.0231 \text{ cm}^{-1}$; 而输出信号的中心频率相差却较大, 最小的为 $\Delta\nu_s = 7156 \text{ MHz}$. 由于谱线相隔较远, 对最佳气压 $P = 25 \times 133.3 \text{ Pa}$ 左右, 谱线交叠部份的场强都很弱, 即在一谱线的中心位置上, 另一谱线的边缘场强只有 $10^{-13} \sim 10^{-12} \text{ W/cm}^2$, 与本底热噪声的强度接近, 因而相互增强的作用甚微. 另一方面, 由于这些喇曼过程共同消耗一个泵源的能量, 出现竞争的可能. 假设泵能量均匀分配给这些过程, 计算结果表明, 各个过程的亚毫米波信号强度是近似相等的. 但考虑到喇曼过程的竞争, 泵能量在这些过程中的分配并非均等, 泵频偏小的过程将会吸收较多的泵能量, 因而得到增强; 反之, 泵频偏大的过程将被削弱. 从计算结果来看, $a \rightarrow sP(6,0)$ 和 $a \rightarrow sP(6,1)$ 过程的输出强度都较大, 而 $a \rightarrow sP(6,2)$ 过程的输出却较弱. 在图中每个喇曼过程是一对 AC-Stark 分裂的双线.

1.3 喇曼过程相互作用对激光工作参数的影响

小型光泵亚毫米波激光器输出特性与激光器的结构参数、泵场强、工作气体压强密切相关. 在固定样品管长度的条件下, 最佳工作气压直接与泵源和亚毫米波激光的能量交换相关. 由于喇曼相互作用提高了能量转换效率, 因而激光器的最佳工作气压相应下降. CO_2 -9R(16) 泵激励时, 在没有考虑两个喇曼过程相互作用的情况下, 即把激光器的输出看作是两

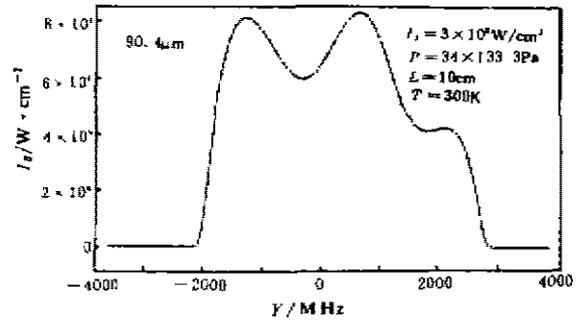


图 2 CO_2 -9R(16) 泵浦时激光器

输出的频谱特性 ($\lambda = 90.4 \mu\text{m}$)

Fig. 2 Laser output spectrum pumped by CO_2 -9R(16) ($\lambda = 90.4 \mu\text{m}$)

喇曼过程输出的叠加,计算出的最佳工作气压是 $50 \times 133.3 \text{ Pa}$;而当考虑了相互作用的情况后,最佳气压下降为 $40 \times 133.3 \text{ Pa}$,与实验结果接近.由此可见,由于相互作用增强效应,能量转换效率提高了,工作气体对泵能量的吸收更有效,因而泵场强沿着管长的衰落加快了,使最佳气压降低.

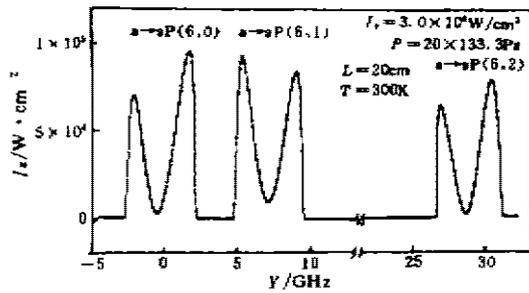


图 3 CO₂-9R(30)泵浦时激光输出的频谱特性($\lambda=67\mu\text{m}$)

Fig. 3 Laser output spectrum pumped by CO₂-9R(30) ($\lambda=67\mu\text{m}$)

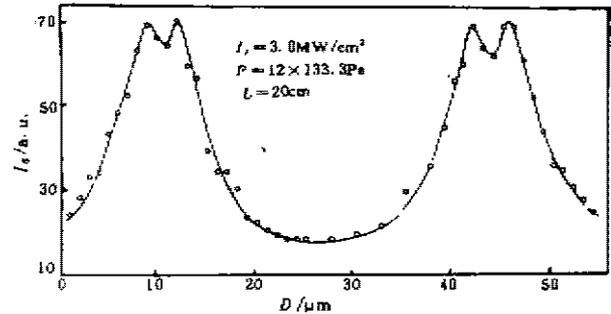


图 4 CO₂-9R(30)泵浦时 F-P 干涉曲线($\lambda=67\mu\text{m}$)

Fig. 4 F-P interferogram of optically pumped NH₃ submillimeter wave laser pumped by CO₂-9R(30) ($\lambda=67\mu\text{m}$)

2 实验研究

喇曼过程相互作用的影响,在亚毫米波激光输出的幅度和频谱特性上得到反映.通过专门亚毫米波 F-P 干涉仪或迈克尔逊干涉仪的测量,可以观察到激光频谱特性的变化^[9,10].在 CO₂-9R(30)泵时,由于喇曼过程的竞争,a \rightarrow sP(6,0)和 a \rightarrow sP(6,1)占优势.我们用 F-P 干涉仪测出相应的干涉图(见图 4),图中出现明显的双峰,峰间距为 $3\mu\text{m}$.根据干涉阶数 $q \approx 60$ 估算两峰的中心波长相差约为 $0.1\mu\text{m}$,这个结果与 a \rightarrow sP(6,0)及 a \rightarrow sP(6,1)两过程的中心波长之差很接近.由于干涉仪分辨率的限制,未能分辨出 AC-Stark 双线.

3 结论

在小型光泵亚毫米波激光器中,由于工作气压高,激光的物理过程比较复杂.在 NH₃ 分子系统中,由于反演振动能级结构的相似性,当在同一泵线激励时,往往会产生多个喇曼过程.若它们的辐射跃迁频率很接近,则由于频谱交叠而相互放大,产生相互作用增强现象;如果这些过程辐射跃迁频率相差较大,则相互作用不能增强,反而出现竞争现象,导致泵频率偏小的过程占优势而得到加强,而泵频偏大的过程则被削弱.喇曼过程相互作用增强效应可使光泵激光器的输出功率和效率得到显著提高,谱线增宽,频率调谐范围加大.

在合适的工作条件下,NH₃ 分子的其它能级的喇曼过程也可能存在相互作用,在具有反演振动能级的其它分子系统中,也可能出现喇曼过程相互作用的现象.喇曼过程相互作用的研究有助于深入揭示光泵激光的内部过程.喇曼过程相互增强效应无疑地是提高激光

器性能的一个积极因素。

参考文献

- 1 Luo X, Zou J, Qin B, et al. *International Journal of Infrared & millimeter Waves*, 1989, **10**(2):237
- 2 Lin Y, Luo X, Qiu B, et al. *International Journal of Infrared & millimeter Waves*, 1989, **10**(12):1427
- 3 罗锡璋, 林哈莹, *电子学报*, 1992, **30**(11):39
- 4 Li Y, Zheng X, Lin Y. *International Journal of Infrared & millimeter Waves*, 1993, **14**(3):589
- 5 Zheng X, Li Y, Lin Y. *International Journal of Infrared & millimeter Waves*, 1993, **14**(5):1091
- 6 Zheng X, Li Y, Lin Y. *International Journal of Infrared & millimeter Waves*, 1993, **14**(11):2367
- 7 Weiss C O, et al. In: *Reviews of Infrared and Millimeter Waves*, ed. by Button K J, 1984, **2**:277
- 8 Marx R, et al. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 1981, QE-17:1123
- 9 郑兴世, 黎 耀, 林哈莹, 等. *红外与毫米波学报*, 1993, **12**(3):229
- 10 郑兴世, 黎 耀, 林哈莹. *中山大学学报*, 1994, **33**(3):36

INTERACTION ENHANCEMENT AND COMPETITION OF RAMAN PROCESSES IN OPTICALLY PUMPED NH₃ SUBMILLIMETER WAVE LASER*

Zheng Xingshi Luo Xizhang Lin Chunguang Liu Min Lin Yikun

(Department of Electronics, Zhongshan University, Guangzhou, Guangdong 510275, China)

Abstract When strong CO₂-9R(16) line pumped NH₃, two Raman processes s→aP(7,0) and s→sP(7,1) interacted with each other and were enhanced. When CO₂-9R(30) line pumped NH₃, competition among the processes took place, and some were enhanced while others diminished.

Key words submillimeter wave laser, Raman process, interaction of Raman processes

* The project supported by the National Natural Science Foundation and Doctoral Research Foundation of Education Committee of China