

# 光泵远红外激光 AC Stark 分裂的频谱特性\*

秦家银 郑兴世 罗锡璋 林贻堃  
(中山大学电子系, 广东, 广州, 510275)

TN241

A

**摘要** 利用三能级近似和多组三能级近似模型的光泵远红外激光增益解析表达式, 通过迭代运算得到了 CO<sub>2</sub>-10R(8) 泵浦 NH<sub>3</sub> 分子远红外激光的工作气压与输出光强的关系曲线和 AC Stark 分裂的频谱曲线, 以及最佳工作气压的理论值, 并在实验中测出了 NH<sub>3</sub> 分子 281 μm 远红外信号的频谱特性和最佳工作气压, 实验结果与理论计算结果符合得较好.

**关键词** 光泵远红外激光, 交流斯塔克效应, 喇曼过程相互作用, 频谱特性

## 引言

光泵远红外激光的频谱特性可反映气压、泵功率等因素对激光器输出光强的影响, 从而得到各种优化参数. NH<sub>3</sub> 分子的偶极跃迁受到单色辐射场的扰动出现 AC Stark 分裂. 在大功率光泵的情况下, AC Stark 效应对远红外激光频谱特性有较大的影响. 林贻堃教授等<sup>[1~3]</sup>研究了光泵 CH<sub>3</sub>F 和 HF 分子的远红外激光的 AC Stark 效应, 郑兴世教授等<sup>[4~6]</sup>研究了 CO<sub>2</sub>-9R(16) 和 9R(30) 泵浦的 NH<sub>3</sub> 分子远红外激光的喇曼相互作用及其对频谱特性的影响. CO<sub>2</sub>-10R(4)、10R(6)、10R(8)、10R(14) 泵浦的 NH<sub>3</sub> 分子远红外激光谱线非常密集, 有很高的研究价值, 但这些谱线至今只有实验报道<sup>[7,8]</sup>, 还缺乏深入的理论研究. 本文以 CO<sub>2</sub>-10R(8) 泵浦的 NH<sub>3</sub> 分子远红外激光为研究对象, 从理论和实验上对其 AC Stark 分裂的频谱特性和最佳工作气压进行了研究.

## 1 频谱特性的理论研究

### 1.1 理论模型和计算方法

光泵远红外激光分子系统至少涉及 3 个能级. 三能级系统的分子运动规律服从密度矩阵方程,  $\frac{\partial \rho}{\partial t} = -\frac{i}{\hbar}[H, \rho]$ , 该方程求解过程中在一定的近似条件下可得到受激气体分子系统内各处对远红外信号和泵浦信号的增益系数<sup>[9]</sup>:

$$G_s = -\frac{2N_o \mu_s^2}{\epsilon_0 \eta c \hbar B_s} (\omega_{32} T_s - y) \text{Im}(P_{32}) - \alpha_s, \quad (1)$$

$$G_p = \frac{2N_o \mu_p^2}{\epsilon_0 \eta c \hbar B_p} (\omega_{31} T_s - x) \text{Im}(P_{13}) - \alpha_p; \quad (2)$$

式中  $N_o$  为激光有效工作分子粒子数密度,  $\eta = \sqrt{\epsilon/\epsilon_0}$  为激活介质折光系数,  $B_p = \mu_p E_p / 2\hbar$ ,  $B_s$

\* 国家自然科学基金和高校博士点专项科研基金资助项目  
本文 1995 年 11 月 6 日收到, 修改稿 1996 年 4 月 29 日收到

$=\mu_s E_s / 2\hbar, \mu_p, \mu_s$  为分子在三能级系统中跃迁复电偶极矩,  $x$  和  $y$  分别为泵失谐量和信号失谐量,  $\alpha_s$  和  $\alpha_p$  为激光损耗率. 另外, 在光泵气体远红外分子系统中, 根据振转跃迁选择定则, 将相互间能发生跃迁的级集合作为一组能级, 可以证明<sup>[10]</sup>, 当系统由  $N$  组相互独立的能级组成时, 总增益可近似地表示为  $G = \sum_{n=1}^N G^n$ , 而  $G^n$  可由各自的密度矩阵运动方程独立求解.

由于增益除与分子本身结构有关外, 还跟压强  $P$ 、温度  $T$ 、泵浦光强  $I_p$ 、远红外信号光强  $I_s$  等因素有关, 因此要得出一个增益的解析式非常困难, 一般采用迭代法通过计算机求解输出光强, 将第一段的输出  $I_{s1}$  和  $I_{p1}$  作为第二段的输入, 第  $K$  段输出  $I_{sk}, I_{pk}$  作为第  $k+1$  段的初始光强, 即  $I_s^{k+1} = I_s^k \exp(-G_s^{k+1} Z), I_p^{k+1} = I_p^k \exp(-G_p^{k+1} \Delta Z)$ , 由此可计算出最后的输出光强. 为求出整个激光过程的频谱特性曲线, 一般以远红外信号的中心频率为 0 点, 在一定偏频范围(如  $-2\text{GHz} \sim +2\text{GHz}$ )内逐点扫描计算. 为求出气体压强与输出光强之间的关系曲线, 进而得到最佳工作气压的理论值, 分别取不同的压强值, 计算出对应的输出频谱特性, 再将所得的频谱分布曲线以频率为变量进行积分.

1.2 数值计算

查  $\text{NH}_3$  分子能级表发现, 与  $\text{CO}_2$ -f0R(8) 谱线波数 ( $967.70719\text{cm}^{-1}$ ) 相近的振动跃迁为  $s \rightarrow aQ(2, 2), s \rightarrow aQ(1, 1), s \rightarrow aQ(2, 1)$  和  $s \rightarrow aQ(3, 2)$ , 对应的泵频偏分别为  $-0.03271\text{cm}^{-1}, -0.29611\text{cm}^{-1}, -0.06741\text{cm}^{-1}$  和  $+0.29909\text{cm}^{-1}$ , 相应的远红外跃迁为  $a \rightarrow sQ(2, 2), a \rightarrow sQ(1, 1), a \rightarrow sQ(2, 1)$  和  $a \rightarrow sQ(3, 2)$ , 对应的远红外波长分别为  $281.05\mu\text{m}, 283.4\mu\text{m}, 287.3\mu\text{m}$  和  $286.9\mu\text{m}$ , 中心频率分别为  $1066.597\text{GHz}, 1057.58377\text{GHz}, 1043.18336\text{GHz}$  和  $1044.64915\text{GHz}$ . 以  $s \rightarrow aQ(2, 2)$  为例, 三能级系统中 AC Stark 分裂的远红外

跃迁过程近似地看作共振激光过程和偏频喇曼过程(见图 1).

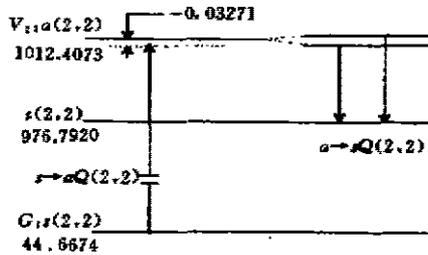


图 1 AC Stark 分裂的 OPFIRL 激光跃迁过程示意图 (单位:  $\text{cm}^{-1}$ )  
Fig. 1 Schematic diagram of OPFIRL transition for AC Stark splitting (unit:  $\text{cm}^{-1}$ )

根据文献[11, 12]可求出相应的跃迁偶极矩和横向、纵向弛豫时间. 参与激光过程的有效分子数  $N_s = fN, N$  为气体的分子数密度,  $f = \sum_{j=1}^{12} e^{-E_j/KT} / \sum_{j=1}^{\infty} e^{-E_j/KT}$ . 远红外信号起始光强是白噪声中的远红外成分, 其大小根据黑体辐射公式计算, 为简单起见, 取  $I_{s0} = 1.0 \times 10^{-13} \text{W/cm}^2$ , 泵浦激光的起始光强  $I_{p0}$  由实验确定, 取  $I_{p0} = 1.0 \times 10^6 \text{W/cm}^2$ , 由此可求出  $E_{s0}$  和  $E_{p0}$ , 热平衡时各能级的分子集居度  $\rho_{ij} = e^{-E_j/KT} / \sum_{j=1}^{12} e^{-E_j/KT}$ . 我们在实验中采用 0.2m 长的激光管, 温度  $T$  等于 300K.

1.3 计算结果与讨论

我们求出压强分别为 1.0kPa、1.33kPa、2.0kPa 和 2.67kPa, 中心频率  $f_{01} = 1066.597\text{GHz}$ (对应  $a \rightarrow sQ(2, 2)$  跃迁)为 0 点, 信号频偏为  $-2.0 \sim +3.0\text{GHz}$  的 AC Stark 分裂的

频谱特性(见图 2),图 2(a)为三能级近似下  $a \rightarrow sQ(2,2)$  跃迁的频谱特性,图 2(b)为四组三能级近似下的频谱特性,其中曲线 A、B、C 和 D 分别是压强为 1.0kPa, 1.33kPa, 2.0kPa 和 2.67kPa 的计算结果. 从图 2(a)中可发现,在三能级近似下,当压强较低时 AC Stark 分裂的双峰大小接近相等(压强更低时,两峰大小更接近,图中未画出),当压强升高时,左峰大小变化不大,但谱线中心向 0 点移动且谱线增宽,而右峰迅速减小,其中心也向 0 点移动,即两峰的间距减小,说明 AC Stark 分裂的裂距减小;当压强增加到 2.67kPa 时,右峰完全消失. 对应信号频偏  $y < 0$  的左峰为 AC Stark 效应影响下的共振激光过程,而  $y > 0$  的右峰为 AC Stark 效应影响下的频偏喇曼过程,在三能级近似下,AC Stark 效应是喇曼过程和单光子共振过程相互作用的结果. 当压强增加时由于这两个过程相互作用的竞争加强,导致喇曼跃迁峰消失. 在多组三能级近似下,对应的 AC Stark 分裂喇曼峰消失的临界值比三能级近似的临界值低,如图 2(b)所示,  $P=2.0\text{kPa}$  时, AC Stark 分裂的喇曼峰消失. 在多组三能级近似下, AC Stark 效应来源于多光子喇曼过程和共振激光过程的相互作用,因此考虑多光子过程后,压强升高时多光子喇曼过程较之于单光子喇曼过程相互作用更强,共振过程和喇曼过程竞争加强,导致对应的 AC Stark 分裂喇曼峰消失的临界压强值比一组三能级近似下的临界值低.

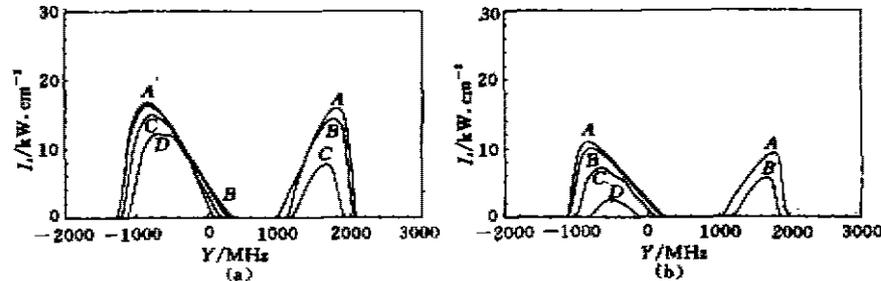


图 2  $\text{CO}_2\text{-}10\text{R}(8)$  泵浦  $\text{NH}_3$  分子远红外激光的频谱特性  
(a) 一组三能级 (b) 四组三能级

Fig. 2 Spectral characteristic in  $\text{NH}_3\text{-OPFIRL}$ , pumped by  $\text{CO}_2\text{-}10\text{R}(8)$   
(a) one three-level group (b) four three-level groups

另外,我们取压强  $P=1.0\text{kPa}$  时,分别以中心频率  $f_{02}=1057.58377\text{GHz}$ (对应  $a \rightarrow sQ(1,1)$  跃迁)和  $f_{03}=1043.18336\text{GHz}$ (对应  $a \rightarrow sQ(2,1)$  跃迁)为 0 点,求出了相应的频谱特性曲线(见图 3),其中曲线 A 和 B 分别是一组三能级和四组三能级近似的情况. 由于  $a \rightarrow sQ(1,1)$  的泵频偏较大( $-0.29611\text{cm}^{-1}$ ),其吸收效率很低,因此输出光强很弱, (见图 3(a)). 而  $a \rightarrow sQ(2,1)$  的泵频偏较小( $-0.06741\text{cm}^{-1}$ ),吸收泵能量效率较高,输出较强(见图 3(b)). 但这两处均没有出现 AC Stark 分裂双峰. 林貽堃<sup>[3]</sup>等研究表明, AC Stark 分裂与泵浦激光有密切的联系,其分裂随  $B_p$  增大而增大,裂距  $\Delta\omega_s = \mu_p E_p / \hbar$ ; 当  $B_p \approx 1$  时 AC Stark 分裂消失. 而  $B_p$  对其影响不大. 以此来分析,  $s \rightarrow aQ(2,2)$  跃迁  $\mu_p = 6.26 \times 10^{-31}\text{coul. m}$ ,  $s \rightarrow aQ(1,1)$  跃迁  $\mu_p = 5.42 \times 10^{-31}\text{coul. m}$ ,  $s \rightarrow aQ(2,1)$  跃迁  $\mu_p = 4.43 \times 10^{-31}\text{coul. m}$ , 而  $s \rightarrow aQ(3,2)$  跃迁  $\mu_p$  更小. 在泵浦强度  $I_{p0} = 1.0 \times 10^6\text{W/cm}^2$  的条件下,只有  $s \rightarrow aQ(2,2)$  跃迁满足 AC Stark 分裂的条件,出现 AC Stark 双峰(见图 2),而  $s \rightarrow aQ(1,1)$  和  $s \rightarrow aQ(2,1)$  跃迁不

出现 AC Stark 双峰,由此可见,本文计算结果与林贻莹教授等的结论是一致的.

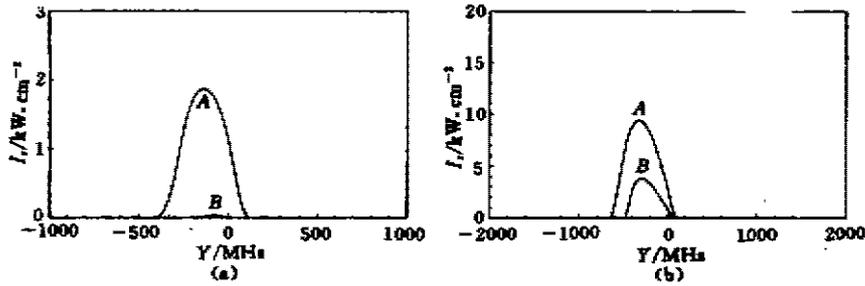


图 3 不同中心频率  $\text{CO}_2$ -10R(8) 泵浦远红外激光的频谱特性

Fig. 3 Spectral characteristic of OPFIRL pumped by  $\text{CO}_2$ -10R(8) for different central frequency

从图 2 和图 3 可知,一组三能级系统的输出光强  $I$ , 比多组三能级的  $I$ , 大,其主要原因是在三能级近似下,全部泵能量都与该系统耦合,因此其输出光强  $I$ , 较大.而在多组三能级近似下,泵能量同时与各组三能级进行能量交换,每组三能级系统分配的泵功率较小,而各组三能级辐射的远红外信号中心频率间隔较大,相互耦合很弱,因此各中心频率附近的多能级在近似下的输出光强  $I$ , 较小.因此,对超辐射 OPFIRL,中心频率相差较大的不同三能级之间相互耦合较弱,在不专门研究多光子相互作用时,其频谱特性采用一组三能级近似即可,但当不同三能级间远红外辐射的中心频率相隔很近,相互耦合较强时,采用多组三能级近似较好<sup>[6]</sup>,特别是研究多光子效应时,必须采用多能级近似.另外,在腔式 OPFIRL 中,由于信号多次来回反射,使弱信号得到足够的放大,不同三能级组耦合加强,采用多组三能级近似较好<sup>[10]</sup>.

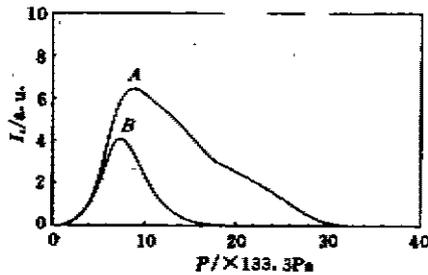


图 4  $\text{NH}_3$ -OPFIRL 输出光强与工作气压的关系曲线

Fig. 4 Output power of  $\text{NH}_3$  OPFIRL vs. operating gas pressure.

工作气体压强对 OPFIRL 的输出强度有较大的影响.而在 OPFIRL 中激光过程可以看作是泵浦激光与信号激光的能量交换过程.对一定管长的激光器,气体压强过大,能量交换过快,激活长度以外的工作介质对激光出现纯吸收,输出光强下降;气体压强过小,激活长度大于样品管长,在样品管内能量交换尚未完成,信号光强则未达到最大值.因此一定管长的激光器存在一个最佳工作气压,其大小与泵浦光强  $I_{p0}$  有关,在该气压下输出光强最大.为此我们求出了  $\text{CO}_2$ -10R(8) 泵浦时  $\text{NH}_3$  分子  $281\mu\text{m}$  的工作气压与输出光强的关系曲线(见图 4),图 4 中曲线 A 为  $a_i=0$  的情况,对应的

的最佳工作气压  $P_{opt} = 1.2\text{kPa}$ ,当考虑信号的自吸收效应,忽略瑞利散射等引起的损耗,可以认为  $\text{NH}_3$  分子的远红外信号损耗率为  $KP^2$ <sup>[13]</sup>,根据拟合实验曲线可得  $K=0.14$  左右,这样得到的关系曲线如图 4 中曲线 B 所示,对应的最佳工作气压为  $1.0\text{kPa}$ .

## 2 实验

实验系统由 TEA-CO<sub>2</sub> 激光器、NH<sub>3</sub> 分子激光器、测量系统以及真空系统组成<sup>[9]</sup>。为减小 CO<sub>2</sub> 泵浦激光输出不稳定造成 F-P 干涉仪输出端远红外信号的检测误差,我们在远红外样品管的输出端(F-P 干涉仪的输入端)增加一个分束器,远红外透过率在 80% 以上,使大部分远红外信号透过它进入 F-P 干涉仪,少部分经反射由热释电探测器检测,在示波器上显示,并以此信号为基准,对检测信号进行监视和线性校正,以提高频谱特性干涉图测量的可靠性和节省检测时间。采用以上的方法测出了 CO<sub>2</sub>-10R(8) 泵浦的 NH<sub>3</sub> 分子远红外信号的 F-P 干涉图(见图 5),其中 F-P 干涉仪的两镜初始间距约为 0.6cm。根据 F-P 干涉仪的原理,采取连续测多个峰位求平均的方法得到两主峰间隔约为 140.2 $\mu$ m,两小峰间隔约为 140.7 $\mu$ m,其波长分别为 280.4 $\mu$ m 和 281.4 $\mu$ m,对应 a $\rightarrow$ sQ(2,2) 跃迁的 AC Stark 分裂双峰,这一结果与 H. R. Fetterman 等<sup>[7,8,14]</sup> 的实验结果相符,根据他们报道,CO<sub>2</sub>-10R(8) 泵浦的 NH<sub>3</sub> 分子远红外信号有两个,波长分别为 280.5 $\mu$ m 和 281.48 $\mu$ m,对应的频率分别为 1068.7789GHz 和 1065.0579GHz,而 a $\rightarrow$ sQ(2,2) 跃迁的中心频率为 1066.597GHz,对照图 2(a) 中双峰峰位,刚好右峰对应 280.5 $\mu$ m 的谱线,左峰对应 281.48 $\mu$ m 的谱线。由此可见,理论计算

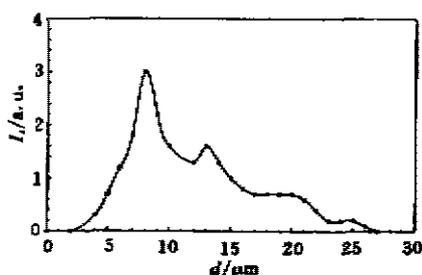


图 5 CO<sub>2</sub>-10R(8) 泵浦 NH<sub>3</sub>-OPFIRL 的 F-P 干涉曲线  
Fig. 5 F-P interferogram of NH<sub>3</sub>-OPFIRL, pumped by CO<sub>2</sub>-10R(8)

与实验结果符合得较好。另外,从图 5 中可见,在小峰的右边有一个不太突出的平台,根据 F-P 干涉仪的距离和峰位可判定为 a $\rightarrow$ sQ(1,1) 跃迁,其中心频率为 1057.58377GHz,波长为 283.4 $\mu$ m,对应图 3(a)。但干涉图中未发现对应 a $\rightarrow$ sQ(2,1) 跃迁峰,说明这个较强的跃迁在整个激光过程中,由于在 HN<sub>3</sub> 密集的转动能级间产生自吸收而无输出信号。

另外,我们测出了 CO<sub>2</sub>-10R(8) 泵浦时 NH<sub>3</sub>-OPFIRL 的最佳工作气压约为 1.0kPa,其中激光管长为 20cm,泵浦光强约为 1.0 $\times$ 10<sup>6</sup>W/cm<sup>2</sup>,这与图 4 的理论计算结果相符。

## 3 结论

通过对 CO<sub>2</sub>-10R(8) 泵浦 NH<sub>3</sub> 分子远红外激光理论和实验研究,得到以下结果:

(1) AC Stark 分裂不仅与泵浦光强度、分子振动跃迁偶极矩有关,而且与工作气压有关,当工作气压值增大到一定限度时 AC Stark 分裂的喇曼峰消失,且多能级近似下对应喇曼峰消失的临界压强值比相应的三能级近似的临界值低。

(2) 与 CO<sub>2</sub>-10R(8) 泵浦相匹配的几组三能级中 a $\rightarrow$ sQ(2,2) 跃迁最强,其  $\mu_p$  大,出现 AC Stark 分裂比峰,而 a $\rightarrow$ sQ(1,1) 跃迁,由于  $\mu_p$  小只有单峰且较弱,理论计算的 a $\rightarrow$ sQ(2,1) 跃迁峰实验中未观察到。

(3) 当激光管长  $l=20$ cm 时,CO<sub>2</sub>-10R(8) 泵浦的 NH<sub>3</sub>-OPFIRL 的最佳工作气压的理论计算值和实验结果一致,约为 1.0kPa,不考虑信号自吸收的理论计算值偏大,约为 1.2kPa。

以上研究结果对深入理解 OPFIRL 的辐射机理和激光器的参数优化有一定的参考价值。另外,如果采用腔式光泵激光器,由于信号的多次来回反射强信号会出现饱和现象,而弱信号得到放大,可能会出现一些有意义的特性,对此我们拟作进一步的理论和实验研究。

### 参考文献

- 1 林贻莹,丘乘生,宫 蒂. *波谱学报*,1983,1(1):22
- 2 林贻莹,宫 蒂,黎 耀. *光学学报*,1986,6(8):688
- 3 林贻莹,宫 蒂. *中山大学学报(自然科学版)*,1988,27:(4):36
- 4 Zheng X,Li Y,Lin Y. *Int. J. IR and MMW*,1993,14(5):1091
- 5 Zheng X,Li Y,Lin Y. *Int. J. IR an MMW*,1993,14(11):2387
- 6 郑兴世,罗锡璋,林春光,等. *红外与毫米波学报*,1996,15(1):38
- 7 Fetterman H R,Schlossberg H R,Waldmand J. *Opt. commun.* ,1972,6:156
- 8 Gullberg K,Hartman B,Kleman B. *Physica Scripta*,1973,8:177
- 9 罗锡璋,林贻莹. *电子学报*,1992,20(11):39
- 10 Luo X,Lin C,Lin Y. *Int. J. IR and MMW*,1995,16(8):1335
- 11 Takami M,Jones H,Oka T. *J. Chem. phys.* ,1979,70(7):3557
- 12 Willenberg G D,Heppner J,Foote F B. *IEEE J. Q. E.* ,1982,WE-18:2060
- 13 林贻莹,郑兴世,罗锡璋,等. *红外与毫米波学报*,1991,10(5):259
- 14 Yoshida T,yamanashi N,Miyaziki K,et al. *Opt. Commun.*,1978,26:410

## SPECTRAL CHARACTERISTIC OF AC STARK SPLITTING IN OPTICALLY PUMPED FIR LASER\*

Qin Jiayin Zheng Xingshi Luo Xizhang Lin Yikun

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

**Abstract** The output intensity of the optically pumped  $\text{NH}_3$  molecules far-infrared laser ( $\text{NH}_3$ -OPFIRL) pumped by  $\text{CO}_2$ -10R(8) was calculated by solving the density matrix equation and by means of iteration, in which the multi-group three-level systems were used. The theoretical correlation between the output intensity and operating gas pressure was studied and the theoretical values of the optimum operating gas pressures were calculated. Meanwhile, the spectral characteristic of AC Stark splitting was studied. Lastly, the optimum operating gas pressure and the spectral characteristic of  $281\mu\text{m}$   $\text{NH}_3$  laser line were studied experimentally. The experimental results were in good agreement with the theoretical calculation results.

**Key words** optically pumped FIR laser, AC Stark effect, interaction of Raman processes

\* The project supported by the National Natural Science Foundation of China and the Special Research Foundation of Doctorate Station in Universities