

抽运光强度对光学抽运重水气体 产生 THz 激光的影响分析*

何志红^{1)†} 姚建铨^{1)‡} 时华峰²⁾ 黄 晓²⁾
罗锡璋²⁾ 江绍基²⁾ 李建荣²⁾ 王 鹏¹⁾

1) 天津大学精密仪器与光电子工程学院激光与光电子研究所, 教育部光电信息技术科学重点实验室, 天津 300072)

2) 中山大学光电材料与技术国家重点实验室, 广州 510275)

(2007 年 2 月 19 日收到, 2007 年 3 月 30 日收到修改稿)

利用半经典理论, 对脉冲光学抽运重水气体产生 THz 激光信号过程进行分析, 对其中抽运光强度与输出 THz 信号光之间的关系进行了数值计算和求解. 结果表明, THz 信号出射光强度跟抽运源入射光强度之间不满足简单的线性关系, 而是呈现高阶的非线性关系. 在工作介质腔长、气压和工作温度一定的条件下, 存在最佳抽运光强度. 在一定的抽运光强范围内, THz 信号出射光强度与抽运源入射光强度的关系呈现近似线性的增长关系, 抽运光能量和信号光能量之间的转换效率相对较高, 当抽运光强超过一定值时, 由于瓶颈效应的发生会导致 THz 输出信号的逐步减弱, 并产生一定的频率调谐范围.

关键词: 太赫兹 (THz), 半经典理论, 受激 Raman 发射, 重水气体分子

PACC: 4255, 0365S, 4265C, 3300

1. 引 言

太赫兹波 (THz, 1 THz = 10^{12} Hz) 是指频率范围从 100 GHz 到 10 THz, 相应的波长范围从 30 μm 到 3 mm, 介于红外光和毫米波之间的电磁波, 也称为 T-Ray. 近年来, 随着对整个电磁波谱研究的深入及完善, 以及科学技术的进步, 对该领域的研究工作日益重视, 太赫兹激光在成像、医学诊断、环境科学、信息通信及基础物理研究领域有着广阔的应用前景和应用价值. 国内外的研究状况表明, 缺少高功率、低造价和便携式的室温太赫兹光源是限制现代太赫兹技术应用的最主要因素, 因此, 获得 THz 波的方法是 THz 研究领域的前沿和重点之一^[1-4]. 自从 Chang 和 Bridges^[5] 使用 CO_2 激光抽运 CH_3F , $\text{C}_2\text{H}_2\text{Cl}$ 和 CH_3OH 得到几十条远红外谱线振荡以来, 这一技术已经成为产生太赫兹频段激光的重要并且实用的方法. 重水 (D_2O) 气体, 是通过激光抽运产生 THz 的主要工作物质之一. 其波长 385 μm 的出射谱线是光学抽运方式产生 THz 的特征谱线, 该谱线可用于测定

等离子体的密度温度及均匀性等参数, 有着很强的实用性. 尽管以前对光学抽运的工作方式和产生机理的研究已经做了较多的工作, 但已有的对光学抽运重水气体分子激光器的研究主要处于实验阶段, 缺乏相应的理论分析, 并且研究对象都为较长的工作腔 (一般为 3 m 左右的长腔), 庞大的体积大大限制了其应用的前景^[6,7]. 在成功求解光学抽运 NH_3 分子的理论及相应实验的基础上^[8], 本文从 Lamb 的半经典密度矩阵的理论出发, 对脉冲 CO_2 激光抽运重水气体分子产生 THz 激光信号 (以超辐射方式激发波长为 385 μm 的特征谱线为例) 的原理进行分析, 对其中抽运光强与 THz 信号出射光之间的关系进行数值计算和求解.

2. 理论模型与计算

半经典密度矩阵理论由 Lamb 提出^[9]. Lamb 理论的基本思想是把激光辐射场看作经典的、由 Maxwell 方程描述的电磁波场, 将介质分子 (重水气体分子) 看作 Schrödinger 方程描述的量子力学系统.

* 高等学校博士学科点专项科研基金 (批准号: 20040056010) 资助的课题.

† 通讯联系人. E-mail: honghezhi@sohu.com, honghezhi@163.com

密度矩阵理论实际上就是在系统的精确的波函数不知道的情况下计算力学量算符的平均值的一种处理方法. 半经典密度矩阵理论不仅能够描述光学抽运 THz 激光介质的各种跃迁过程, 而且也描述了这些过程的相互作用和激光过程的饱和效应, 同时可以反映激光介质的非线性效应, 尤其对 Raman 和 AC-Stark 效应的非线性过程的描述. 因此采用半经典密度矩阵理论来描述光学抽运 THz 激光信号过程是一种比较准确有效的处理方法^[9].

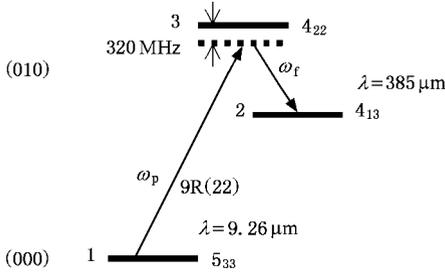


图 1 光学抽运 D_2O 产生 THz 过程的三能级近似

光泵产生 THz 信号的过程至少涉及三个能级. 图 1 中所示是重水气体分子的正常三能级模型, 抽运源是 CO_2 激光器的 $9R(22)$ 谱线, 其波长为 $\omega_p = 1079.8522 \text{ cm}^{-1}$ ($9.26 \mu\text{m}$), 抽运工作介质为 D_2O 气体分子, 其中涉及到的三个能级分别为 $E_1(5_{33}) = 267.58083 \text{ cm}^{-1}$, $E_2(4_{13}) = 1321.41375 \text{ cm}^{-1}$, $E_3(4_{22}) = 1347.39375 \text{ cm}^{-1}$ ^[10]. 其中 5_{33} , 4_{13} , 4_{22} 分别表示三个能级对应的量子状态数 $J_{(k-1)k+1}$. E_1 能级到 E_3 能级的跃迁为 P 支跃迁, 能级差为 $\omega_{13} = E_3 - E_1 = 1079.81292 \text{ cm}^{-1}$. 光学抽运气体激光器对抽运源要求其谱线必须与气体的吸收谱线很好地重合, 而在上面的三能级模型中抽运源与辐射谐振频率没有完全重合, 抽运失谐量 $\delta_p = \omega_p - \omega_{13} = -0.0393 \text{ cm}^{-1}$ (约 320 MHz). 对于强功率脉冲光学抽运机理, 100—1000 MHz 的频偏将会导致受激 Raman 发射^[11]. 分子由 E_3 能级跃迁回到 E_2 能级, 为 R 支跃迁, 跃迁的能级差为 $\omega_{23} = E_3 - E_2 = 25.98 \text{ cm}^{-1}$, 辐射产生的 THz 信号波长为 $\lambda_s = 385 \mu\text{m}$ (约为 0.779 THz). 这是抽运重水气体分子产生的所有谱线中最典型的 THz 信号谱线, 因而有时候也被成为光学抽运重水气体分子的特征谱线.

在强抽运激光作用下, 分子气体被激活, 具有一定的 THz 波增益, 激光辐射是从微弱的背景噪声辐射开始的, 由普朗克公式可以得到黑体辐射白噪声

中的 THz 信号部分光强为

$$I_{s0} = \frac{8\pi h\nu^3}{c^3(e^{h\nu/kT} - 1)} d_\nu, \quad (1)$$

THz 信号带宽 d_ν 取 $d_\nu = 100 \text{ MHz}$, 辐射 THz 波长为 $385 \mu\text{m}$, 代入上面的公式可以得到 $I_{s0} = 2.2 \times 10^{-13} \text{ W/cm}^2$. 初始 THz 信号在激活介质中不断得到放大, 最后输出大功率 THz 波激光脉冲. 而抽运光能量则不断被气体分子吸收, 其中部分转换成 THz 波激光能量.

由于参与抽运过程的激光场很强时, 会呈现多种非线性效应, 其中受激 Raman 发射就是非常典型的非线性效应. 在很多的非微扰理论中, 描述起源于量子噪声的受激 Raman 发射过程, 通常应采用全量子理论^[12,13], 然而量子电动力学 (quantum electrodynamics, QED) 理论^[14]无法针对实际的实验条件建立其完整的理论模式. 反而实验物理学家在直观上基于统计理论建立起来的唯象模式^[15]更为有用. Raymer 等指出如果定义合适的自发辐射源半经典 Raman 理论仍然适用^[12].

由于抽运源 CO_2 激光脉冲的持续时间一般为 100 ns, 而作为抽运工作物质的重水蒸气的弛豫时间数量级为 10 ns, 因此可以近似地把系统的工作看成稳定状态. 对于受激 Raman 发射的理论已经进行了比较多的研究^[16,17]. 由半经典理论可以导出在稳定条件下抽运光场和 THz 信号场的普遍耦合方程为

$$\begin{aligned} & \frac{\partial E_p(r,t)}{\partial r} + \frac{\eta_p}{c} \frac{\partial E_p(r,t)}{\partial t} \\ &= \frac{1}{2} \beta_p E_s \sin\varphi(r,t) - \gamma_p E_p, \\ & \frac{\partial E_s(r,t)}{\partial r} + \frac{\eta_s}{c} \frac{\partial E_s(r,t)}{\partial t} \\ &= \frac{1}{2} \beta_s E_p \sin\varphi(r,t) - \gamma_s E_s, \\ & \varphi(r,t) = -\kappa \int_{-\infty}^t E_p(r,t') E_s(r,t') dt', \quad (2) \end{aligned}$$

其中 $E_p(r,t)$, $E_s(r,t)$ 分别为抽运场和 THz 信号场的振幅, γ_p , γ_s 分别是抽运场和 THz 信号场的衰减因子, η_p , η_s 分别是抽运场和 THz 信号场的反射率. 这里对抽运场和 THz 信号场均作了慢变化振幅和恒定相位的假设.

利用半经典密度矩阵理论, 可以求出光学抽运 THz 激光中受激气体分子系统内 THz 激光信号增益系数 G_s 和抽运信号增益系数 G_p 为^[8]

$$G_s = -\frac{2N_v \mu_s^2 T_s}{\epsilon_0 \eta_s c h B_s} \ln(P_{32}) - \alpha_s,$$

$$G_p = -\frac{2N_v\mu_p^2 T_a}{\epsilon_0 \eta c \hbar B_p} \ln(P_{13}) - \alpha_p,$$

$$I_s = I_{s0} e^{-G_s L},$$

$$I_p = I_{p0} e^{-G_p L}, \quad (3)$$

其中 N_v 为 D_2O 气体有效分子数密度,对于理想气体,单位体积的粒子数 N 与气体压强 P 的关系为 $N = P/(kT)$,考虑到 D_2O 分子的能级数据^[9],不难求得 $T = 300$ K 温度下该三能级系统中参与反应的工作气体 D_2O 分子数为 $N_v = 6.15 \times 10^{21} P$,其中 P 的单位取 Torr(1 Torr = 133.3 Pa), μ_s 和 μ_p 分别为跃迁复电偶极距, ϵ_0 为真空中的介电常数, $\eta = (\epsilon/\epsilon_0)^{1/2}$ 为 D_2O 气体的折射率, c 为真空中光速, $\hbar = h/2\pi$ 为普朗克常数, L 为介质工作腔长, α_s 和 α_p 分别为修正系数。

由(3)式可以看出,信号增益与抽运光强和 THz 信号本身的光强有关,即 G_s, G_p 与 I_s, I_p 相互制约.采用迭代算法,将介质工作腔微分为 N 等份(如图 2),每份的长度为 ΔZ .从第一段开始计算,并且把第一段输出端的抽运场光强和 THz 信号场光强 I_{p1}, I_{s1} 作为第二段输入端的抽运场光强和 THz 信号场起始光强,依此类推,把第 n 段输出端的抽运场光强和 THz 信号场光强 I_{pn}, I_{sn} 作为第 $n+1$ 段输入端的抽运场光强和 THz 信号场起始光强,在 ΔZ 长度内可以认为 G_s, G_p 为稳定值,有

$$I_{(n+1)p} = I_{pn} e^{-G_p \Delta Z},$$

$$I_{(n+1)s} = I_{sn} e^{-G_s \Delta Z}. \quad (4)$$

由此迭代计算出工作腔内各点对抽运光强的吸收系数和对 THz 信号光强的增益系数,以 THz 信号的中心频率(失谐量为零)为零点,在一定频偏范围内对工作腔中各点逐点计算,采用数值解法求解,最后即可以得到激光器整个工作腔输出端功率密度和频谱特性分布曲线. ΔZ 取值越小,计算的结果越精确,但是计算量也就越大,在合理的范围内可以取 $\Delta Z = 1$ mm.

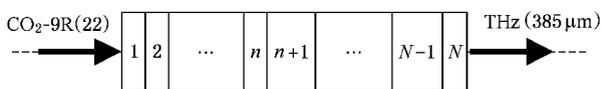


图 2 腔长微分成 N 份

利用已知的各项参数就可以进行相应的数值计算,并得到抽运光强与 THz 信号输出之间相互关系的一些曲线图形。

3. 抽运光强对 THz 信号的影响分析

光学抽运重水气体产生 THz 激光的物理机理在实质上是发生在背景噪声上的受激 Raman 发射.在计算出的图 3 中可以看出,当抽运源光强很小时, $I_{p0} = 1.0 \times 10^3$,在背景噪声中有很微弱的受激 Raman 发射产生的 THz 信号(如图 3(a)).随着抽运源光强的增大, $I_{p0} = 2.0 \times 10^3$,背景噪声中的 THz 信号明显增强(如图 3(b)).当抽运源光强继续增大时, $I_{p0} = 3.0 \times 10^3$,受激 Raman 发射产生的 THz 信号强度远远大于背景噪声(如图 3(c)).并且可以看出,当受激 Raman 发射发生的过程中,在中心频率为零,对应谐振发生的时候,信号强度远远小于发生在频率偏差为 $\delta_s = 320$ MHz 的受激 Raman 发射(如图 3(c'))是(c)的局部放大图.可以得出结论,在光学抽运重水产生 THz 激光的过程中,起主要贡献作用的是发生在频率偏差约为 $\delta_s = 320$ MHz 受激 Raman 发射。

从图 3 也可以看出受激 Raman 发射具有明显的阈值性.只有当入射光强度或功率密度大于一定的数值时,受激 Raman 发射才会明显产生.图 4 是出射 THz 信号光强度及频偏与抽运入射光强度之间的关系曲线,可以看出在此关系曲线中,有三个区域.当抽运源入射光强度较小时, $I_{p0} < 1.0 \times 10^4$ W/cm²,THz 出射光强度较小, $I_s < 100$ W/cm²,这个区域可以称为激发区或未激活区,即图 4(a)区域.在这个区域,重水气体的受激 Raman 发射活性并没有被完全激活,THz 信号出射光强度变化缓慢.增大抽运源入射光强度,当 1.0×10^4 W/cm² $< I_{p0} < 1.0 \times 10^6$ W/cm²,THz 信号出射光强度迅速增加,这个区域可以称为抽运能量和信号光能量的高效率转换区,即图 4(b)区域.在这个区域,THz 信号出射光强度与抽运源入射光强度的关系呈现近似线性的依赖增长,重水气体的受激 Raman 发射的活性被迅速激活,因此可以近似地认为抽运光的强度阈值是 1.0×10^4 W/cm².继续增大抽运源入射光强度, $I_{p0} > 1.0 \times 10^6$ W/cm²,THz 信号出射光强度的增长迅速减缓,这个区域可以称为饱和区,即图 4(c)区域.在这个区域,THz 信号出射光强度不再随着抽运源入射光强度的增加而增加,呈现饱和的特性,此时由于参与激光工作的介质分子数有限,过高的抽运能量不能被有效的吸收转换成 THz 信号光能量输出,而是转换成热能等其他能量引起工作介质分子能级分布结

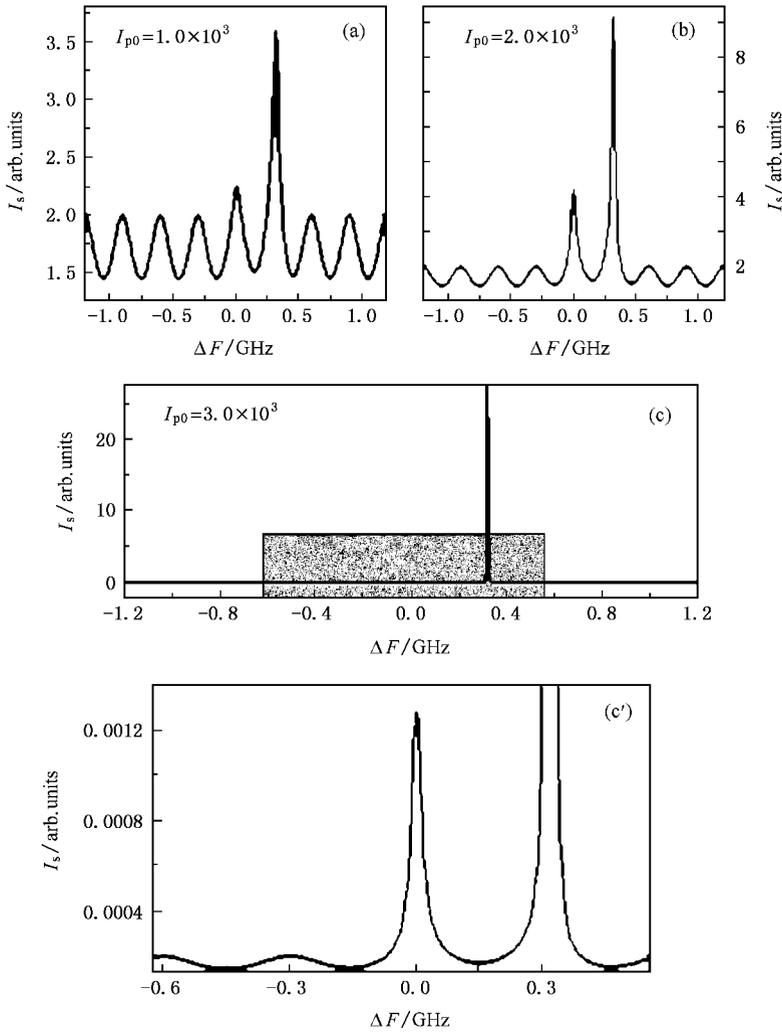


图 3 受激 Raman 发射频谱图

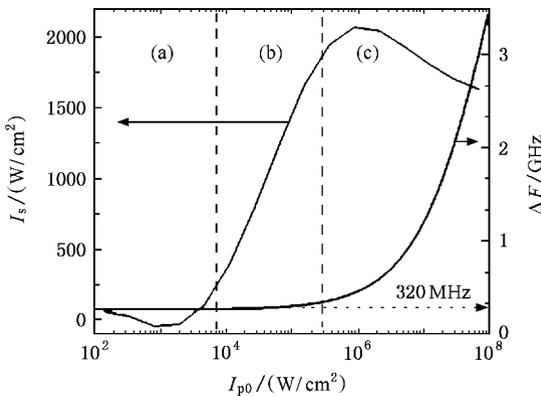


图 4 受激 Raman 发射的阈值与入射光强度的关系(计算过程中,工作腔长度取 0.5 m,工作气压取 5×133.3 Pa,工作环境温度取室温 300 K)

构的改变,导致有效工作分子数量反而减少,引起瓶颈效应,工作介质的自吸收效应逐渐明显,输出的

THz 激光信号会逐渐衰减,此时只有设法增加有效工作分子数,克服瓶颈效应才能继续提高 THz 信号输出光强.在图 4 中可以看出,抽运源入射光强度取 $I_{p0} = 1.0 \times 10^6$ W/cm² 附近的值,可以最有效地得到稳定的 THz 激光信号输出.为此我们对抽运源入射光强度和 THz 信号出射光强度的关系进行了 5 阶拟合,结果为

$$I_s \propto I_p^5 - 23.13 I_p^4 + 193.25 I_p^3 - 708.96 I_p^2 + 1137.46 I_p - 633.55, \quad (5)$$

可以明显看出 THz 信号出射光强度跟抽运源入射光强度之间不满足简单的线性关系,而是呈现高阶的非线性关系.

受激 Raman 发射的抽运光强与 THz 信号出射光的频偏也有相关关系.出射光没有频率偏差时,即 $\delta_s = \omega_s - \omega_{32} = 0$,对应 THz 信号中心频率为零,主要发生完全的谐振受激发射,出射光有一定频率偏差

时,在这里 $\delta_s = \omega_s - \omega_{32} = 320$ MHz,不满足发生完全谐振受激发射的条件,主要发生受激 Raman 发射.从图 4 中曲线可以看出,当抽运光强处于 1.0×10^4 W/cm² < I_{p0} < 1.0×10^6 W/cm²,光学抽运重水气体产生 THz 信号主要是发生在频偏为 $\delta_s = 320$ MHz 的受激 Raman 发射.但是当抽运源入射光强度很大, $I_{p0} > 1.0 \times 10^6$ W/cm² 时,输出的 THz 信号激光频率偏差发生了很大程度的移动,产生了一定的频率调谐范围.

4. 结 论

我们从 Lamb 的半经典密度矩阵理论出发,应

用三能级分子系统模型对激光抽运重水气体产生 THz 激光过程进行了理论分析,并根据数值计算的结果,分析了抽运光强度对 THz 信号输出的影响关系.结果表明,在工作腔长度、工作气压和温度一定的情况下,存在最佳的抽运光强度,在抽运光强足够高时,输出的 THz 信号激光频率与抽运光强间存在一定的调谐关系.这些结果能够为光学抽运重水气体 THz 激光器的设计提供有效的帮助.

- [1] Peter H S, March 2002 *IEEE Transactions on Microwave Theory and Techniques* **50** 910
- [2] Ferguson B, Zhang X C 2002 *Nature* **1** 26
- [3] Yue W W, Wang W N, Zhao G Z, Zhang C L, Yan H T 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 3094 (in Chinese) [岳伟伟、王卫宁、赵国忠、张存林、闫海涛 2005 物理学报 **54** 3094]
- [4] Zhang X B, Shi W 2006 *Acta Phys. Sin.* **55** 5237 (in Chinese) [张显斌、施 卫 2006 物理学报 **55** 5237]
- [5] Chang T Y 1970 *Opt. Commun.* **1** 423
- [6] Paul W, Mulligan W J, Erickson R 1983 *IEEE Journal of Quantum Electronics* **19** 4
- [7] Koichi S, Kanji M, Masaaki N, Takashige T 1992 *Japanese Journal of Applied Physics Part 2-Letters* **31** 1556
- [8] Qin J Y, Luo X Z, Zheng X S, Zhou X R, Huang X, Lin Y K 1998 *Acta Optica Sinica* **18** 262 (in Chinese) [秦家银、罗锡璋、郑兴世、邹晓蓉、黄 晓、林贻堃 1998 光学学报 **18** 262]
- [9] Sargent M III, Scully M O, Lamb W E 1974 *Laser Physics* (Boston, Addison-Wesley Publishing Co., Inc.) 189-191
- [10] Mellau G, Mikhailenko S N, Starikova E N, Tashkun S A, Over H, Tyuterey V G 2004 *Journal of Molecular Spectroscopy* **224** 32
- [11] Hodges D T 1978 *Infrared Physics* **18** 375
- [12] Raymer M G, Mostowski J 1981 *Phys. Rev. A* **24** 1980
- [13] Trippenbach M, Rzazewski J, Raymer M G 1984 *J. Opt. Soc. Am. B* **1** 671
- [14] Apanasevich P A 1996 *Laser Physics* **6** 1198
- [15] van den Heuvel J C, van Putten F J M, Lerou R J L 1994 *IEEE JQE* **30** 2211
- [16] Rokni M, Flusberg A 1986 *IEEE JQE* **22** 1102
- [17] Li T C, Huo Y P 1965 *Acta Phys. Sin.* **21** 1933 (in Chinese) [李铁城、霍裕平 1965 物理学报 **21** 1933]

Effect of pump laser intensity on optically pumped D_2O gas terahertz laser^{*}

He Zhi-Hong^{1,2)†} Yao Jian-Quan^{1,2)} Shi Hua-Feng²⁾ Huang Xiao²⁾
Luo Xi-Zhang²⁾ Jiang Shao-Ji²⁾ Li Jian-Rong²⁾ Wang Peng¹⁾

¹ *College of Precision Instrument and Opto-Electronics Engineering, Institute of Laser and Opto-electronics, Key Laboratory of Laser and Opto-electric Information Science and Technology, Ministry of Education, Tianjin University, Tianjin 300072, China*

² *State Key Laboratory of Optoelectronic Materials and Technologies, Sun Yat-Sen University, Guangzhou 510275, China*

(Received 19 February 2007 ; revised manuscript received 30 March 2007)

Abstract

Based on the semi-classical theory, the pulsed-laser pumped D_2O gas tera-Hz laser was theoretically analyzed, the relation between the intensity of pumping laser and the output tera-Hz laser light was studied and numerically calculated. According to the result of calculation, the intensity of the output tera-Hz laser light increased approximately linearly with that of the input laser in a certain range, but gradually decreased because of the bottleneck effect when the intensity of the input laser exceeded a fixed value, and for given gas pressure, cavity length and operating temperature, an optimal intensity of pumping laser exists. A frequency tuning range of the output signal occurred when the intensity of the input laser was strong enough.

Keywords : terahertz (THz), semi-classical theory, stimulated Raman emission, D_2O gas molecule

PACC : 4255, 0365S, 4265C, 3300