

染料激光器模式耦合半经典理论

潘 少 华

(中国科学院物理研究所)

1980年8月29日收到

提 要

本文将兰姆的二能级半经典激光器理论,推广至染料激光器系统,得出模式耦合方程,并作了些具体讨论.

一、引 言

兰姆半经典激光器理论^[1]用经典的麦克斯韦方程描述电磁场和用量子力学描述激活介质能级.这种理论的优点是,能够比较好地说明与激活介质和激光场的波动特性有关的一系列现象,例如增益饱和、模式耦合和竞争、频率牵引、拍频锁定等^[2].但是兰姆理论仅适用于可当作激光二能级看待的“四能级”和“三能级”激活介质,以及二能级有塞曼分裂的情形和有多普勒频移等非均匀展宽的情形.至于对染料激光器和染料分子系统能级,绝大多数工作限于用速率方程来处理问题.近年来虽曾结合强光被染料溶液吸收时的某些效应有过半经典理论的分析^[3],以及为研究染料激光器辐射场的光子统计等问题有过全量子力学理论^[4]和量子力学理论的半经典近似^[5].这些工作由于只研究激光器的单模运转,或研究单频辐射场对溶液的作用,因而把染料分子的振动能级簇看成单一的简并能级,或者单一能级受环境影响有某种非均匀展宽的情形.但是上面提到的半经典激光器理论所擅长于研究的拍频锁定、模式耦合和竞争等效应,都来源于多模运转条件,因此,单模的理论不能说明这些问题.据作者所知,至今尚未有多模运转染料激光器的系统的半经典理论.因此为了深入分析近年来出现的与染料激光器的模式耦合和竞争等效应有关的问题,例如激光强迫振荡器^[6,7]、自注入调频放大^[8]和其他光谱窄化方法^[9],输出谱特性的研究^[10],腔内吸收光谱^[11],分布反馈^[12]和锁模^[13]等,以及为了进一步发展有关的理论和器件,本文将兰姆二能级理论推广至染料分子的多能级系统.

二、粒子数矩阵的运动方程

染料分子与激光过程有关的重要能级如图1. G 是基态, S_1 是第一激发单态, T_1 和 T_2 是两个最低三重态. l 表示 G 的高振动能级簇, k 表示 S_1 的高振动能级簇, m 表示 T_2 的振动能级簇.带箭头的实线表示允许辐射跃迁,带箭头的虚线表示不允许辐射跃迁

或非辐射跃迁^[41]。受泵源作用,分子被激发至 k 能级后,经快速非辐射跃迁至 S_1 的最低

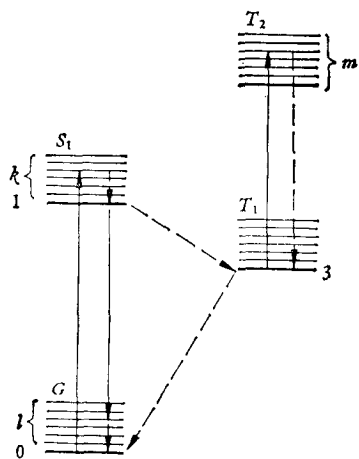


图1 染料分子能级

振动子能级 1,故 $k(k \neq 1)$ 能级簇上的粒子数少到可以忽略^[42],受激发射主要发生于从能级 1 至能级簇 l 。也由于分子向 G 的最低振动子能级 0 快速弛豫,故 $l(l \neq 0)$ 能级簇上的粒子数可以忽略^[43]。另外,从能级 1 至 T_1 ,分子以一定的几率发生非辐射跃迁,对于好的激光染料,约有百分之几的能级 1 的分子发生这种跃迁^[46],它对激光运转有如下两种不利影响:第一,由于 T_1 态的这种捕获作用,减少了可用于受激发射的能级 1 的粒子数;第二,从 T_1 态向 T_2 能级簇辐射跃迁的吸收谱与上述受激发射谱一般有重叠,从而降低激光过程的效率。从三重态 T_1, T_2 到单态 G, S_1 之间由于自旋量子数不相等,彼此间的辐射跃迁是被禁戒的。

用 E_n 和 P_n 分别代表频率等于 ν_n 模式的电场强度和极化强度的振幅。从电磁场麦克斯韦方程推出由 P_n 确定 E_n 的关系如下^[4]:

$$\dot{E}_n + \frac{1}{2} \frac{\nu_n}{Q_n} E_n = -\frac{1}{2} \frac{\nu_n}{\epsilon} \text{Im}(P_n). \quad (1)$$

上式中 Q_n 是品质因子, ϵ 是介质的介电常数, $\dot{E}_n$ 上面的圆点表示对时间求微商, Im 表示虚部。另一方面,从电场强度确定 P_n 的关系由量子力学方法求出,与 (1) 式自洽地最终决定 E_n 。

用 c_i 表示能级 i 的几率振幅, c_i^* 表示它的共轭复数。单分子密度矩阵 ρ 的元素定义为 $\rho_{ij} = c_i c_j^*$ 。设分子的哈密顿函数为 $H = H_0 + V$, H_0 是未受微扰的部分, V 是由外电场引起的势能,它的矩阵元 $V_{ij} = -\mu_{ij} E(z, t)$, $E(z, t)$ 是电场强度,已设它与 x, y 坐标无关, $\mu_{ij} = -e Z_{ij}$ 是电偶极矩矩阵元, e 是电子电荷的绝对值。根据薛定谔方程,并计及能级有限寿命包括唯象衰减项后, ρ 的运动方程如下:

$$\dot{\rho} = -\frac{1}{2} (\Gamma \rho + \rho \Gamma) - i \hbar^{-1} [H, \rho]$$

式中 Γ 具有矩阵元 $\Gamma_{ij} = \gamma_i \delta_{ij}$, γ_i 是能级 i 的衰减率, $\hbar$ 是普朗克常数除以 2π , 式中的方括弧是量子泊松括号。

由于图 1 中带箭头的虚线是不允许辐射跃迁,而只存在 S_1 与 G 之间、 T_1 与 T_2 之间这样两种允许辐射跃迁^[47],所以 $\mu_{kl}, \mu_{k0}, \mu_{l1}, \mu_{10}$ 和 μ_{m3} 不为零,其余 μ_{ij} 等于零。这种处理方法与已有理论^[46]一致。设单位体积内染料分子在零电场时能级 i 以速率 $\lambda_i(z, t)$ 获得粒子,从上述单分子密度矩阵运动方程出发,根据文献[1]并参照文献[5, 18],经过一定的推导,进而得到单位体积密度矩阵,亦称粒子数矩阵, $\rho(z, t)$ 的运动方程如下:

$$\dot{\rho}(z, t) = \Lambda(z, t) - \frac{1}{2} (\Gamma \rho(z, t) + \rho(z, t) \Gamma) - i \hbar^{-1} [H, \rho(z, t)], \quad (2)$$

式中 $\Lambda(z, t)$ 具有矩阵元 $\Lambda_{ij} = \lambda_j(z, t) \delta_{ij}$ 。对于 $\lambda_j(z, t)$ 可作如下具体说明:

$\lambda_k(z, t) = W_{0k}(z, t)$, 表示在外泵源作用下,单位体积内分子按速率 W_{0k} 从能级 0 被抽运到能级 k ;

$\lambda_1(z, t) = W_{01}(z, t) + \sum_k \gamma_k \rho_{kk}(z, t)$, W_{01} 是泵源从能级零向能级 1 的抽运率, $\sum_k \gamma_k \rho_{kk}$ 是单位时间从能级簇 k 向能级 1 非辐射跃迁的粒子数, 其中 γ_k 表示能级 k 的衰减率;

$\lambda_l(z, t) = \alpha_l \gamma_1 \rho_{11}(z, t)$, 是单位时间内从能级 1 向能级 l 自发辐射的粒子数, 其中 γ_1 是能级 1 自发辐射衰减率, α_l 是能级 l 所得的份数, 它对应于荧光谱;

$$\lambda_3(z, t) = K_{ST} \rho_{11}(z, t) + \sum_m \beta_m \gamma_m \rho_{mm}(z, t),$$

这里 λ_3 的下标指三重态 T_1 , K_{ST} 是从能级 1 向能级 3 交叉弛豫的衰减率, $\sum_m \beta_m \gamma_m \rho_{mm}$ 是单位时间从 T_2 能级簇 m 向能级 3 返回的粒子数, 其中 γ_m 是能级 m 的衰减率, β_m 称分子返回系数.

根据以上说明, 可将(2)式的分量方程写出如下:

$$\begin{aligned} \dot{\rho}_{kk} &= W_{0k} - \gamma_k \rho_{kk} + i\hbar^{-1} \left[\rho_{k0} V_{0k} - V_{k0} \rho_{0k} + \sum_l (\rho_{kl} V_{lk} - V_{kl} \rho_{lk}) \right], \\ \dot{\rho}_{11} &= \sum_k \gamma_k \rho_{kk} + W_{01} - (\gamma_1 + K_{ST}) \rho_{11} + i\hbar^{-1} \left[\rho_{10} V_{01} - V_{10} \rho_{01} \right. \\ &\quad \left. + \sum_l (\rho_{1l} V_{l1} - V_{1l} \rho_{l1}) \right], \\ \dot{\rho}_{1l} &= \alpha_l \gamma_1 \rho_{11} - \gamma_l \rho_{1l} + i\hbar^{-1} \left[\rho_{11} V_{1l} - V_{1l} \rho_{11} + \sum_k (\rho_{lk} V_{kl} - V_{lk} \rho_{kl}) \right], \\ \dot{\rho}_{33} &= K_{ST} \rho_{11} - \gamma_3 \rho_{33} + \sum_m \beta_m \gamma_m \rho_{mm} + i\hbar^{-1} \sum_m (\rho_{3m} V_{m3} - V_{3m} \rho_{m3}), \\ \dot{\rho}_{mm'} &= -(i\omega_{mm'} + \gamma_{mm'}) \rho_{mm'} + i\hbar^{-1} (\rho_{m3} V_{3m'} - V_{m3} \rho_{3m'}) \quad \text{包括 } m = m', \\ \dot{\rho}_{kk'} &= -(i\omega_{kk'} + \gamma_{kk'}) \rho_{kk'} + i\hbar^{-1} \left[\rho_{k0} V_{0k'} - V_{k0} \rho_{0k'} + \sum_l (\rho_{kl} V_{lk'} \right. \\ &\quad \left. - V_{kl} \rho_{lk'}) \right] \quad k \neq k', \\ \dot{\rho}_{k1} &= -(i\omega_{k1} + \gamma_{k1}) \rho_{k1} + i\hbar^{-1} \left[\rho_{k0} V_{01} - V_{k0} \rho_{01} + \sum_l (\rho_{kl} V_{l1} - V_{kl} \rho_{l1}) \right], \\ \dot{\rho}_{kl} &= -(i\omega_{kl} + \gamma_{kl}) \rho_{kl} + i\hbar^{-1} \left(\rho_{k1} V_{1l} - V_{k0} \rho_{0l} + \sum_{k'} \rho_{kk'} V_{k'l} \right. \\ &\quad \left. - \sum_{l'} V_{kl'} \rho_{l'l} \right), \\ \dot{\rho}_{k0} &= -(i\omega_{k0} + \gamma_{k0}) \rho_{k0} + i\hbar^{-1} \left(\rho_{k1} V_{10} - V_{k0} \rho_{00} + \sum_{k'} \rho_{kk'} V_{k'0} \right. \\ &\quad \left. - \sum_l V_{kl} \rho_{l0} \right), \\ \dot{\rho}_{1l} &= -(i\omega_{1l} + \gamma_{1l}) \rho_{1l} + i\hbar^{-1} \left(\rho_{11} V_{1l} - V_{10} \rho_{0l} + \sum_k \rho_{1k} V_{kl} - \sum_{l'} V_{1l'} \rho_{l'l} \right), \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
\dot{\rho}_{10} &= -(i\omega_{10} + \gamma_{10})\rho_{10} + i\hbar^{-1} \left(\rho_{11}V_{10} - V_{10}\rho_{00} + \sum_k \rho_{1k}V_{k0} - \sum_l V_{1l}\rho_{l0} \right), \\
\dot{\rho}_{1l'} &= -(i\omega_{1l'} + \gamma_{1l'})\rho_{1l'} + i\hbar^{-1} \left[\rho_{11}V_{1l'} - V_{1l}\rho_{1l'} + \sum_k (\rho_{1k}V_{kl'} - V_{lk}\rho_{kl'}) \right] \quad l \neq l', \\
\dot{\rho}_{10} &= -(i\omega_{10} + \gamma_{10})\rho_{10} + i\hbar^{-1} \left[\rho_{11}V_{10} - V_{1l}\rho_{10} + \sum_k (\rho_{1k}V_{k0} - V_{lk}\rho_{k0}) \right], \\
\dot{\rho}_{m3} &= -(i\omega_{m3} + \gamma_{m3})\rho_{m3} + i\hbar^{-1} \left(\sum_{m'} \rho_{mm'}V_{m'3} - V_{m3}\rho_{33} \right), \\
\dot{\rho}_{ij} &= \dot{\rho}_{ji}^* \tag{3}
\end{aligned}$$

以及粒子数守恒条件

$$\rho_{00} + \sum_k \rho_{kk} + \rho_{11} + \sum_l \rho_{ll} + \rho_{33} + \sum_m \rho_{mm} = N,$$

式中 $N = N(z)$ 表示单位体积分子数。(3)式中 $\gamma_{k0} = \frac{1}{2} \gamma_k$, $\gamma_{10} = \frac{1}{2} (\gamma_1 + K_{ST})$, $\gamma_{kl} = \frac{1}{2} (\gamma_k + \gamma_l + K_{ST})$, $\gamma_{1l} = \frac{1}{2} (\gamma_1 + K_{ST} + \gamma_l)$, 其余 $\gamma_{ij} = \frac{1}{2} (\gamma_i + \gamma_j)$, $\hbar\omega_{ij} = E_i - E_j$, E_i 和 E_j 分别表示能级 i 和 j 的能量。

文献[5]曾给出染料激光器六能级近似下密度矩阵的运动方程,它们相当于本文方程组(3)在一定近似条件下的特例。

三、模式耦合方程

势能函数 V 的矩阵元,按模函数 $U_n(z)$ 展开,在旋波近似下可表示成下式:

$$V_{ij}(z, t) = -\frac{1}{2} \mu_{ij} \sum_n E_n(t) \exp[-i(\nu_n t + \phi_n)] U_n(z).$$

对驻波运转 $U_n(z) = \sqrt{2} \sin(K_n z)$; 对单向行波运转 $U_n(z) = \exp(iK_n z)$, $K_n = n\pi/L$, L 是腔长。振幅 $E_n(t)$ 和相位 $\phi_n(t)$ 是 t 的缓变函数。与兰姆二能级理论类似,把抽运率 W_{0k} 和 W_{0l} 看成基本参量求解粒子数矩阵运动方程(3)到电场强度三阶,所得的与极化强度有关的矩阵元素 ρ_{kl} , ρ_{k0} , ρ_{1l} , ρ_{10} 和 ρ_{m3} 可由如下的形式关系表示:

$$\begin{aligned}
\rho_{ij} &= -\frac{1}{2} i\hbar^{-1} N_{ij} \mu_{ij} \sum_\sigma E_\sigma U_\sigma \exp[-i(\nu_\sigma t + \phi_\sigma)] D_{ij}(\omega_{ij} - \nu_\sigma) \\
&\quad + \frac{1}{8} i\hbar^{-3} \sum_\mu \sum_\rho \sum_\sigma E_\mu E_\rho E_\sigma U_\mu U_\rho^* U_\sigma \exp\{-i[(\nu_\mu - \nu_\rho + \nu_\sigma)t \\
&\quad + \phi_\mu - \phi_\rho + \phi_\sigma]\} J_{ij}(\rho, \sigma) D_{ij}(\omega_{ij} - \nu_\mu + \nu_\rho - \nu_\sigma), \tag{4}
\end{aligned}$$

式中已用了复数分母式的简化符号 $D_x(\Delta\omega) = 1/(\gamma_x + i\Delta\omega)$, $N_{ij} = N_i - N_j$, N_i 和 N_j 分别表示零电场时单位体积内能级 i 和 j 的粒子数。 $N_i (= \rho_{ii}^{(0)})$ 与 W_{0k} 和 $W (= W_{01} + \sum_k W_{0k})$ 等参量的关系如下:

$$\begin{aligned} N_k &= \gamma_k^{-1} W_{0k}, N_1 = (\gamma_1 + K_{ST})^{-1} W, N_l = (\gamma_1 + K_{ST})^{-1} W \gamma_l^{-1} \alpha_l \gamma_1, \\ N_3 &= (\gamma_1 + K_{ST})^{-1} W \gamma_3^{-1} K_{ST}, N_m = 0, \\ N_0 &= N - \left[\sum_k \gamma_k^{-1} W_{0k} + (\gamma_1 + K_{ST})^{-1} W \left(1 + \gamma_1 \sum_l \alpha_l \gamma_l^{-1} + \gamma_3^{-1} K_{ST} \right) \right]. \end{aligned} \quad (5)$$

(4)式中的 $J_{ij}(\rho, \sigma)$ 表述于后:

$$J_{kl}(\rho, \sigma) = S_{kl} \mu_{1l} + \mu_{k0} G_{0l} + \sum_{k'} S_{kk'} \mu_{k'l} + \sum_{l'} \mu_{kl'} G_{l'1}. \quad (6)$$

$$\begin{aligned} J_{k0}(\rho, \sigma) &= S_{k1} \mu_{10} + \mu_{k0} \left\{ \sum_{k'} \left[1 + \gamma_{k'} D_1(v_\rho - v_\sigma) \left\langle 1 + \gamma_1 \sum_l \alpha_l D_l(v_\rho - v_\sigma) \right. \right. \right. \\ &\quad \left. \left. + K_{ST} D_3(v_\rho - v_\sigma) \right\rangle \right] S_{k'k'} + \left[1 + \gamma_1 \sum_l \alpha_l D_l(v_\rho - v_\sigma) \right. \\ &\quad \left. + K_{ST} D_3(v_\rho - v_\sigma) \right] S_{11} - \sum_l G_{1l} + \sum_m [1 + \beta_m \gamma_m D_3(v_\rho - v_\sigma)] T_{mm}^{(2)} \\ &\quad \left. - T^{(1)} \right\} + \sum_{k'} S_{kk'} \mu_{k'0} + \sum_l \mu_{kl} G_{l0}. \end{aligned} \quad (7)$$

$$\begin{aligned} J_{1l}(\rho, \sigma) &= \left[S_{11} + D_1(v_\rho - v_\sigma) \sum_k \gamma_k S_{kk} \right] \mu_{1l} + \mu_{10} G_{0l} + \sum_k S_{1k} \mu_{kl} \\ &\quad + \sum_{l'} \mu_{1l'} G_{l'1}. \end{aligned} \quad (8)$$

$$\begin{aligned} J_{10}(\rho, \sigma) &= \mu_{10} \left\{ \sum_k \left[1 + \gamma_k D_1(v_\rho - v_\sigma) \left\langle 2 + \gamma_1 \sum_l \alpha_l D_l(v_\rho - v_\sigma) \right. \right. \right. \\ &\quad \left. \left. + K_{ST} D_3(v_\rho - v_\sigma) \right\rangle \right] S_{kk} + \left[2 + \gamma_1 \sum_l \alpha_l D_l(v_\rho - v_\sigma) \right. \\ &\quad \left. + K_{ST} D_3(v_\rho - v_\sigma) \right] S_{11} - \sum_l G_{1l} + \sum_m [1 + \beta_m \gamma_m D_3(v_\rho - v_\sigma)] T_{mm}^{(2)} \\ &\quad \left. - T^{(1)} \right\} + \sum_k S_{1k} \mu_{k0} + \sum_l \mu_{1l} G_{l0}. \end{aligned} \quad (9)$$

$$\begin{aligned} J_{m3}(\rho, \sigma) &= \sum_{m'} T_{mm'}^{(2)} \mu_{m'3} + \mu_{m3} \left\{ T^{(1)} - D_3(v_\rho - v_\sigma) \sum_{m'} \beta_{m'} \gamma_{m'} T_{m'm'}^{(2)} \right. \\ &\quad \left. - K_{ST} D_3(v_\rho - v_\sigma) \left[S_{11} + D_1(v_\rho - v_\sigma) \sum_k \gamma_k S_{kk} \right] \right\}. \end{aligned} \quad (10)$$

(6)至(10)式中已用了如下简化符号:

$$\begin{aligned} S_{ij} &= S_{ij}(\rho, \sigma) = D_{ij}(\omega_{ij} + v_\rho - v_\sigma) \left\{ \mu_{i0} \mu_{j0}^* [N_{i0} D_{i0}(\omega_{i0} - v_\sigma) + N_{j0} D_{j0}(v_\rho - \omega_{j0})] \right. \\ &\quad \left. + \sum_l \mu_{il} \mu_{jl}^* [N_{il} D_{il}(\omega_{il} - v_\sigma) + N_{jl} D_{jl}(v_\rho - \omega_{jl})] \right\}, \\ G_{ij} &= G_{ij}(\rho, \sigma) = D_{ij}(\omega_{ij} + v_\rho - v_\sigma) \left\{ \mu_{1j} \mu_{1i}^* [N_{1j} D_{1j}(\omega_{1j} - v_\sigma) \right. \\ &\quad \left. + N_{1i} D_{1i}(v_\rho - \omega_{1i})] + \sum_k \mu_{kj} \mu_{ki}^* [N_{kj} D_{kj}(\omega_{kj} - v_\sigma) \right. \\ &\quad \left. + N_{ki} D_{ki}(v_\rho - \omega_{ki})] \right\}, \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
T^{(1)} &= T^{(1)}(\rho, \sigma) = D_3(\nu_\rho - \nu_\sigma) \sum_m |\mu_{m3}|^2 N_{m3} [D_{m3}(\omega_{m3} - \nu_\sigma) \\
&\quad + D_{m3}(\nu_\rho - \omega_{m3})], \\
T_{mm'}^{(2)} &= T_{mm'}^{(2)}(\rho, \sigma) = D_{mm'}(\omega_{mm'} + \nu_\rho - \nu_\sigma) \mu_{m3} \mu_{m'3}^* [N_{m3} D_{m3}(\omega_{m3} - \nu_\sigma) \\
&\quad + N_{m'3} D_{m'3}(\nu_\rho - \omega_{m'3})].
\end{aligned}$$

将(4)式代入 $P(\mathbf{z}, t) = \text{Tr}(\rho\mu)$ 得宏观极化强度,取它的傅里叶分量系数求得 P_n . 考虑到 P_n 中所包含的频率大于腔模线宽 ν_n/Q_n 的量,从(1)式可见,由于变化太快,按时间平均效果等于零,因而对 E_n 没有贡献,所以作为一种近似,称自由振荡近似,在将 P_n 代入(1)式时,只保留 P_n 中满足 $(\nu_n - \nu_\mu + \nu_\rho - \nu_\sigma)t + \phi_n - \phi_\mu + \phi_\rho - \phi_\sigma \equiv 0$ 条件^[1]的项,得到模式耦合方程

$$\dot{E}_n = E_n \left(a_n - b_n E_n^2 - \sum_j' c_{nj} E_j^2 \right), \quad (11)$$

式中符号 $\sum_j'$ 表示不包括 $j = n$ 的求和.

$$\begin{aligned}
a_n &= \frac{1}{2} \nu_n (\varepsilon \hbar)^{-1} \left[\sum_l \bar{N}_{1l} |\mu_{1l}|^2 \gamma_{1l}^{-1} L(\omega_{1l} - \nu_n) \right. \\
&\quad \left. + \sum_k \sum_l \bar{N}_{kl} |\mu_{kl}|^2 \gamma_{kl}^{-1} L(\omega_{kl} - \nu_n) \right] - \frac{1}{2} \nu_n / Q_n \\
&\quad - \frac{1}{2} \nu_n (\varepsilon \hbar)^{-1} \left[\sum_k \bar{N}_{0k} |\mu_{k0}|^2 \gamma_{k0}^{-1} L(\omega_{k0} - \nu_n) \right. \\
&\quad \left. + \bar{N}_{01} |\mu_{10}|^2 \gamma_{10}^{-1} L(\omega_{10} - \nu_n) + \bar{N}_3 \sum_m |\mu_{m3}|^2 \gamma_{m3}^{-1} L(\omega_{m3} - \nu_n) \right]. \quad (12)
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
b_n &= \frac{2 + \eta}{16} \left(\frac{\nu_n}{\varepsilon} \right) \hbar^{-3} \text{Re} \left[\sum_k \sum_l \bar{J}_{kl}(n, n) D_{kl}(\omega_{kl} - \nu_n) \mu_{lk} \right. \\
&\quad \left. + \sum_k \bar{J}_{k0}(n, n) D_{k0}(\omega_{k0} - \nu_n) \mu_{0k} + \sum_l \bar{J}_{1l}(n, n) D_{1l}(\omega_{1l} - \nu_n) \mu_{l1} \right. \\
&\quad \left. + \bar{J}_{10}(n, n) D_{10}(\omega_{10} - \nu_n) \mu_{01} + \sum_m \bar{J}_{m3}(n, n) D_{m3}(\omega_{m3} - \nu_n) \mu_{3m} \right]. \quad (13)
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
c_{nj} &= \frac{1}{16} \left(\frac{\nu_n}{\varepsilon} \right) \hbar^{-3} \frac{1}{L} \int_0^L dz [2 + \eta \cos \langle 2(K_j - K_n)z \rangle] \text{Re} \left\{ \sum_k \sum_l [J_{kl}(j, j) \right. \\
&\quad \left. + J_{kl}(j, n)] D_{kl}(\omega_{kl} - \nu_n) \mu_{lk} + \sum_k [J_{k0}(j, j) \right. \\
&\quad \left. + J_{k0}(j, n)] D_{k0}(\omega_{k0} - \nu_n) \mu_{0k} + \sum_l [J_{1l}(j, j) \right. \\
&\quad \left. + J_{1l}(j, n)] D_{1l}(\omega_{1l} - \nu_n) \mu_{l1} + [J_{10}(j, j) + J_{10}(j, n)] D_{10}(\omega_{10} - \nu_n) \mu_{01} \right. \\
&\quad \left. + \sum_m [J_{m3}(j, j) + J_{m3}(j, n)] D_{m3}(\omega_{m3} - \nu_n) \mu_{3m} \right\}. \quad (14)
\end{aligned}$$

这里 $L(\omega_{ij} - \nu_n) = \gamma_{ij}^2 / [(\omega_{ij} - \nu_n)^2 + \gamma_{ij}^2]$ 是无量纲洛伦兹函数, Re 表示实部, $\bar{N}_{kl}$ 等符号上的横线表示沿腔长 L 对 z 求平均, (13)和(14)式中的系数 η 对单向行波运转等于零;对驻波运转等于1.

线性净增益系数 a_n 表达式(12)中右端第二项描述腔模损耗; 第一和第三项分别描述当能级间粒子数差具有零电场值 N_{1l} , N_{0k} 等时, S_1 态的受激发射和基态、 T_1 态对辐射场的吸收。随着电场增加, 由于 S_1 态的受激发射以及基态、 T_1 态对辐射场的吸收, 使各能级粒子数发生了改变而偏离零电场值, 以致有效增益系数 $a'_n (= a_n - b_n E_n^2 - \sum_j' c_{nj} E_j^2)$ 相对于 a_n 有了修正, 描述这种修正的系数 b_n 和 c_{nj} 可分别看成是兰姆理论中自饱和系数及交叉饱和系数的推广。

系数表达式(12)至(14)中所包含的参量组, 除 β_m 和 μ_{kl} 尚难以确定外, 都不难由实验测定, 至于 β_m 绝大多数工作把它当作 1, 而对于现有激光染料由于能级 k 和 l 上粒子数近似为零使 μ_{kl} 在方程中消失^[4]。

四、某些具体化的分析

对于模式耦合的一般公式(11), 可根据具体应用对象, 包括新的激光染料的选用和新型染料激光器的设计, 进行数值计算或解析运算。本节为了便于应用起见, 根据现有典型激光器的通常使用情况, 对方程的系数给出简化的形式, 同时在附录中给出典型染料激光器的速率方程近似。

如同引言中已经谈过的, 三重态对激光器的运转起着不利影响, 一般都设法排除或降低这个不利因素, 例如在染料中加三重态淬灭剂或用其他淬灭办法; 另外在某些特定条件下, 例如脉冲宽度在 $1\mu s$ 以内的染料激光器, 三重态的影响也可以忽略^[19]。同时, 染料激光器一般仅运转于基态吸收谱与荧光谱很少重叠的波长范围, 以减少基态对辐射场吸收的不利作用^[15]。此外, 对于通常使用的激光染料都有 $\gamma_k \gg \gamma_1$ 和 $\gamma_l \gg \gamma_1$, 它们的典型值为^[5]: $\gamma_k \approx 10^{11}/\text{sec}$, $\gamma_l \approx 10^{11}/\text{sec}$, $\gamma_1 \approx 2 \times 10^8/\text{sec}$ 。根据上述条件, 模式耦合方程的系数(12)至(14)式可以简化为

$$a_n = \frac{1}{2} v_n (\epsilon \hbar)^{-1} \bar{N}_1 \sum_l \gamma_{1l}^{-1} |\mu_{1l}|^2 L(\omega_{1l} - v_n) - \frac{1}{2} v_n / Q_n. \quad (15)$$

$$b_n = \frac{2 + \eta}{8} \hbar^{-3} (\epsilon \gamma_1)^{-1} v_n \bar{N}_1 \sum_l \gamma_{1l}^{-1} |\mu_{1l}|^2 L(\omega_{1l} - v_n) \\ \times \sum_{l'} \gamma_{1l'}^{-1} |\mu_{1l'}|^2 L(\omega_{1l'} - v_n). \quad (16)$$

$$c_{nj} = \frac{1}{8} \hbar^{-3} (v_n / \epsilon) \bar{N}_1 [2 + \eta N_{2(j-n)} / \bar{N}_1] \sum_l \sum_{l'} \left\{ (\gamma_1 \gamma_{1l} \gamma_{1l'})^{-1} |\mu_{1l}|^2 |\mu_{1l'}|^2 L(\omega_{1l} - v_n) L(\omega_{1l'} - v_j) + \frac{1}{2} |\mu_{1l}|^2 |\mu_{1l'}|^2 \text{Re}[D_{1l}(\omega_{1l} - v_n) D_1(v_j - v_n) \langle D_{1l'}(\omega_{1l'} - v_n) + D_{1l'}(v_j - \omega_{1l'}) \rangle] \right\}, \quad (17)$$

式中 $N_{2(j-n)} = \frac{1}{L} \int_0^L dz N_1(z, t) \cos[\langle 2(j-n)\pi/L \rangle z]$ 。表达式(15)至(17)可看成是兰姆二能级理论推广至激光下能级为能级簇的结果。

考虑到染料分子的振动、转动子能级,以及由于周围溶剂分子的碰撞和静电作用而来的对每个子能级的加宽作用,使得能级簇 l 实际上构成一个准连续区,故 $\sum_l \cdots$ 可用积分 $\int g(\omega_{ll}) \cdots d\omega_{ll}$ 代替, $g(\omega_{ll})$ 是连续区能级密度 dn/dE 乘以 $\hbar$, 积分范围约为 $\Delta\omega \approx 10^{14}/\text{sec}^{[15]}$, 以 ω_2, ω_1 分别表示积分上、下限, 则系数表达式 (15) 至 (17) 可化成如下形式:

$$a_n = \frac{1}{2} \pi \nu_n (\epsilon \hbar)^{-1} \bar{N}_1 g(\nu_n) |\mu(\nu_n)|^2 - \frac{1}{2} \nu_n / Q_n, \quad (18)$$

$$b_n = \frac{2 + \eta}{8} \pi^2 \hbar^{-3} (\epsilon \gamma_1)^{-1} \nu_n \bar{N}_1 g^2(\nu_n) |\mu(\nu_n)|^4, \quad (19)$$

$$c_{nj} = \frac{\pi^2}{8} \hbar^{-3} (\epsilon \gamma_1)^{-1} \nu_n \bar{N}_1 [2 + \eta N_{2(j-n)} / \bar{N}_1] g(\nu_n) |\mu(\nu_n)|^2 g(\nu_j) |\mu(\nu_j)|^2 \\ \times \left\{ 1 + L_1(\nu_j - \nu_n) \left[1 - \frac{1}{\pi \gamma_1} (\nu_j - \nu_n) \ln \left| \frac{\omega_2 - \nu_n}{\omega_1 - \nu_n} \right| \right] \right\}. \quad (20)$$

系数表达式 (18) 至 (20) 与兰姆二能级理论的相应公式的主要差别可归结于: 后者适用于共振跃迁频率 $\omega = \frac{1}{\hbar} (E_a - E_b)$ 的二能级均匀展宽原子所组成的激光介质, 其展宽范围仅为上、下能级的宽度 $\gamma_{ab} = \frac{1}{2} (\gamma_a + \gamma_b)$. 它相当于在本文中求积分 $\int g(\omega) \cdots d\omega$ 时让 $\delta \left(\omega - \frac{E_a - E_b}{\hbar} \right)$ 取代 $g(\omega)$. 而本文研究对象的情况恰与此相反, 即在 γ_{ll} 范围内 $g(\omega_{ll})$ 可近似地视为常数, 以致出现象 (18), (20) 式右端第一项以及 (19) 式那样随 ν_n 缓变的函数关系, 反映出这类激光器有远远大于 γ_{ll} 的调频范围. (20) 式右端第二项所对应的激活介质非线性效应, 起源于能级 1 粒子数按中间频率 $(\nu_j - \nu_n)$ 脉动, 由于在一般问题中 $|\nu_j - \nu_n| \gg \gamma_1$, 即脉动周期比能级 1 的寿命短得多, 因而其平均效果为零. 这是 (20) 式右端第二项一般非常小而可以将它忽略的物理原因.

在模式耦合问题中, 具有特殊意义的是既有高强度又有窄线宽的情形, 例如象注入锁频和其他光谱窄化方法所要求的那样. 为简单起见, 假设只有一个模 ν_j 具有高的强度, 于是方程 (11) 可分写成如下二式:

$$\dot{E}_j = E_j (a_j - b_j E_j^2), \quad (21)$$

$$\dot{E}_n = E_n (a_n - c_{nj} E_j^2) \quad (n \neq j). \quad (22)$$

以上方程可采用小振动分析法^[1]来研究. 这里仅对此作简单讨论. (22) 式中有有效增益系数 $a'_n = a_n - c_{nj} E_j^2$ 表明, 由于能级 1 的粒子数已大量用于对强模 ν_j 的受激发射, 激活介质部分饱和, 因而使 ν_n 模的增长率降低. 若当 $a_n > 0$ 时, $a'_n < 0$, 则可说 ν_n 模被 ν_j 模所抑制. 相反地, 若 a_n 大到足以克服来自 ν_j 模的竞争, 使得 $a'_n > 0$, 则 ν_n 模得到增长. 特别当 $\dot{E}_j = 0$, 即 E_j 达到极值 a_j/b_j 时, 由 (22) 式以及 (19) 和 (20) 式可得

$$\dot{E}_n = E_n \left\{ a_n - a_j \frac{(2 + \eta N_{2(j-n)} / \bar{N}_1) g(\nu_n) |\mu(\nu_n)|^2}{(2 + \eta) g(\nu_j) |\mu(\nu_j)|^2} \right\}$$

$$\times \left[1 + L_1(\nu_j - \nu_n) \left(1 - \frac{\nu_j - \nu_n}{\pi \gamma_1} \ln \left| \frac{\omega_2 - \nu_n}{\omega_1 - \nu_n} \right| \right) \right], \quad (23)$$

式中 $L_1(\nu_j - \nu_n) = \frac{\gamma_1^2}{(\nu_j - \nu_n)^2 + \gamma_1^2}$. 单模运转的必要条件是, 对于所有 n , 上式右端 E_n 的系数应为负值. 考察式中各量可以判断, 这主要靠 a_j 大于所有的 a_n , 即 ν_j 位于激光器增益曲线的峰值处. 而从 (18) 式看出, 由于在激光器运转的波长范围内 $\nu_n g(\nu_n) |\mu(\nu_n)|^2$ 值改变缓慢, 所以要 a_j 为峰值, 主要得靠 Q_j 具有峰值.

附 录

速率方程近似

对于通常使用的激光染料, 都有 $\gamma_k \gg \gamma_1$, $\gamma_l \gg \gamma_1$, $\gamma_m \gg \gamma_3$, 其典型值为^[17]: $\gamma_k \approx \gamma_l \approx 10^{11}/\text{sec}$, $\gamma_1 \approx 2 \times 10^8/\text{sec}$, $\gamma_3 \approx 0.6 \times 10^7/\text{sec}$, $\gamma_m \approx 10^{10}/\text{sec}$. 运用速率方程近似^[13], 即认为在能级寿命 τ^{-1} 内各能级粒子数 ρ_{ii} 变化很小, 则可以从方程(1)和(3)得到腔体积 V 内模 j 的光子数 $n_j (= \frac{V}{2} (\hbar \nu_j)^{-1} \epsilon E_j^2)$, 以及能级 1、3 和能级簇 m 的单位体积

内粒子数 ρ_{11} , ρ_{33} 和 ρ_{MM} ($= \sum_m \rho_{mm}$) 的运动方程

$$\begin{aligned} \frac{dn_j(t)}{dt} = n_j & \left[B(\nu_j) \frac{1}{L} \int_0^L \rho_{11} |U_j|^2 dx - B_{TT}(\nu_j) \frac{1}{L} \int_0^L \rho_{33} |U_j|^2 dx \right. \\ & \left. - B_{ss}(\nu_j) \frac{1}{L} \int_0^L \rho_{00} |U_j|^2 dx - \nu_j / Q_j \right]. \end{aligned} \quad (\text{A.1})$$

$$\begin{aligned} \frac{d\rho_{11}(z, t)}{dt} = W(z, t) - (\gamma_1 + K_{ST})\rho_{11} - \rho_{11} \sum_{\sigma} V^{-1} n_{\sigma} |U_{\sigma}|^2 B(\nu_{\sigma}) \\ + \rho_{00} \sum_{\sigma} V^{-1} n_{\sigma} |U_{\sigma}|^2 B_{ss}(\nu_{\sigma}). \end{aligned} \quad (\text{A.2})$$

$$\frac{d\rho_{33}(z, t)}{dt} = K_{ST}\rho_{11} - \gamma_3\rho_{33} - \rho_{33} \sum_{\sigma} V^{-1} n_{\sigma} |U_{\sigma}|^2 B_{TT}(\nu_{\sigma}) + \gamma_M \rho_{MM} \quad (\text{A.3})$$

$$\frac{d\rho_{MM}(z, t)}{dt} = \rho_{33} \sum_{\sigma} V^{-1} n_{\sigma} |U_{\sigma}|^2 B_{TT}(\nu_{\sigma}) - \gamma_M \rho_{MM} \quad (\text{A.4})$$

以及粒子数守恒条件

$$\rho_{00} + \rho_{11} + \rho_{33} + \rho_{MM} = N, \quad (\text{A.5})$$

式中

$$B(\nu) = (\epsilon \hbar)^{-1} \pi \nu g(\nu) |\mu(\nu)|^2, \quad (\text{A.6})$$

$$B_{ss}(\nu) = (\epsilon \hbar)^{-1} \pi \nu g_k(\nu) |\mu_{k0}(\nu)|^2, \quad (\text{A.7})$$

$$B_{TT}(\nu) = (\epsilon \hbar)^{-1} \pi \nu g_m(\nu) |\mu_{m3}(\nu)|^2, \quad (\text{A.8})$$

其中 g_k , g_m 分别代表能级簇 k, m 的能级密度乘以 $\hbar$. 在得出 (A.3) 和 (A.4) 式时, 已用了简化条件: $\beta_m = 1$, 且设 γ_m 与下标无关, 记为 γ_M .

方程组 (A.1) 至 (A.5) 式, 除 (A.1) 式方程中未包括自发辐射项以外, 与通常的染料激光器速率方程一样^[14]. 而本文通过半经典理论的计算给出系数表达式 (A.6) 至 (A.8), 它们与文献[17]的分析结果相同. 至于光子数运动方程中的自发辐射项不能由半经典理论直接给出^[10], 而且在使用染料激光器的速率方程时通常也予以忽略^[14].

参 考 文 献

- [1] M. Sargent III, M. O. Scully and W. E. Lamb, Jr., "Laser Physics", (Addison-Wesley, 1974).
- [2] 激光物理学编写组, 激光物理学, 上海人民出版社, 172 页 (1975).
- [3] D. W. Vahey and A. Yariv, *Phys. Rev. A*, **10** (1974), 1578.
- [4] R. B. Schaefer and C. R. Willis, *Phys. Rev. A*, **13** (1976), 1874.
- [5] A. Baczynski et al., *Z. Physik*, **B23** (1976), 205.

- [6] M. Maeda *et al.*, *Japan. J. Appl. Phys.*, **15**(1976), 1731.
- [7] 潘少华等, 物理学报, **30**(1981), 291.
- [8] 许祖彦等, 物理学报, **29**(1980), 1588.
- [9] Y. H. Meyer *et al.*, *Optics Commun.*, **25**(1978), 100.
- [10] P. Juramy *et al.*, *IEEE J. Quantum Electron.*, **QE-13**(1977), 855.
- [11] G. O. Brink, *Opt. Commun.*, **32**(1980), 123.
- [12] M. Sargent III *et al.*, *IEEE J. Quantum Electron.*, **QE-16**(1980), 465.
- [13] J. B. Hamblen and M. Sargent III, *Phys. Rev. A*, **13**(1976), 784.
- [14] J. B. Atkinson and F. P. Pace, *IEEE J. Quantum Electron.*, **QE-9**(1973), 569.
- [15] F. P. Schäfer, *Dye Lasers*, Ed. F. P. Schäfer (Springer-Verlag, 1973).
- [16] B. B. Snavely, *Dye Lasers*, Ed. F. P. Schäfer (Springer-Verlag, 1973).
- [17] O. G. Peterson *et al.*, *J. Appl. Phys.*, **42**(1971), 1917.
- [18] W. Woldlich *et al.*, *Z. Physik*, **201**(1967), 396.
- [19] P. P. Sorokin *et al.*, *J. Chem. Phys.*, **48**(1968), 4726.
- [20] A. Corney, *Atomic and Laser Spectroscopy*, (Clarendon Press, 1977), Chap. 4.

A SEMICLASSICAL THEORY OF MODE COUPLING IN DYE LASERS

PAN SHAO-HUA

(*Institute of Physics, Academia Sinica*)

ABSTRACT

The semiclassical laser theory proposed by Lamb for two-level system is extended to the case of dye lasers. Mode coupling equations are deduced, and a discussion is given.