

# 简并四波混频在原子分子光谱学中的应用

傅 盘 铭

(中国科学院物理研究所)

简并四波混频<sup>[1]</sup>是近年来人们感兴趣的问题。这主要是因为它能产生与人射波的波阵面倒逆的位相共轭波,因此可以消除光在系统中传播时引起的象差。简并四波混频的另一个重要的用途是作为光谱学的一种手段,在原子或分子系统中产生消除多普勒效应的高分辨率光谱。

简并四波混频的机制如下:如图1所示,三束频率相同的人射光与非线性介质作用。其中,第1,2两束光的前进方向相反,而第3束光与第1束光之间通常有一个小夹角。由于介质的非线性效应,将沿第3束光的反方向产生与人射光相同频率的混频信号。更具体说,设三束入射光的光波电场为  $E_\alpha e^{i(\mathbf{K}_\alpha \cdot \mathbf{r} - \omega_\alpha t)}$  (这里  $\alpha = 1, 2, 3$ ),则由于非线性效应在介质中感生的  $i$  方向的三阶非线性极化为

$$P_i^{(3)} = \sum_{j,k,l} \chi_{ij,kl}^{(3)} E_{1j} E_{2k} E_{3l}^* e^{i[(\mathbf{K}_1 + \mathbf{K}_2 - \mathbf{K}_3) \cdot \mathbf{r} - (\omega_1 + \omega_2 - \omega_3)t]}, \quad (1)$$

这里,  $\chi_{ij,kl}^{(3)}$  为介质的三阶极化率,  $E_{\alpha k}$  为  $E_\alpha$  在  $k$  方向的分量。由于  $\mathbf{K}_1 + \mathbf{K}_2 = 0$ , 而

$$\omega_1 = \omega_2 = \omega_3 = \omega,$$

因此,

$$P_i^{(3)} = \sum_{j,k,l} \chi_{ij,kl}^{(3)} E_{1j} E_{2k} E_{3l}^* e^{i[-\mathbf{K}_3 \cdot \mathbf{r} - \omega t]}. \quad (2)$$



图 1

由于  $P_i^{(3)} \propto E_{3i}^*$ , 因此极化产生的混频信号  $E_{4i}$  为第3束光的共轭波,即  $E_{4i} \propto E_{3i}^*$ , 其前进方向为  $-\mathbf{K}_3$  的方向。其次,由于  $|\mathbf{K}_3| = \omega/c$ , 因此位相匹配条件对任何方向的  $\mathbf{K}_3$  都自然成立。本文主要介绍单光子及双光子简并四波混频的原理,并指出其在高分辨率光谱学中的应用。

## 一、单光子简并四波混频

单光子简并四波混频的物理机制如下:考虑一个可被饱和的二能级吸收系统。当入射光的频率  $\omega$  与原子的共振频率  $\omega_0$  接近时(见图2),入射光与物质的相互作用将产生共振增强。如图3所示,考虑三束频率为  $\omega$  的单色光与吸收介质作用。其中,第1,3两束光相互干涉的结果,将产生光强的空间调制。此具有空间调制的共振光与吸收介质作用后,在系统中感生出一个由布居组成的实时空间光栅。而混频信号是第2束光被此布居光栅衍射的结果[见图3(a)]。同理,布居光栅也能由第2,3两束光相互干涉而产生。在这种情况下,混频信号来源于第1束光的衍射[见图3(b)]。

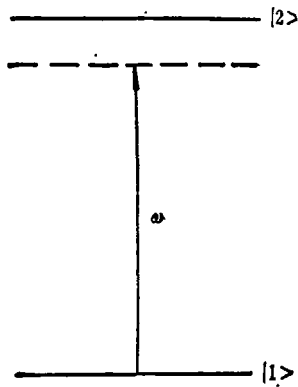


图 2

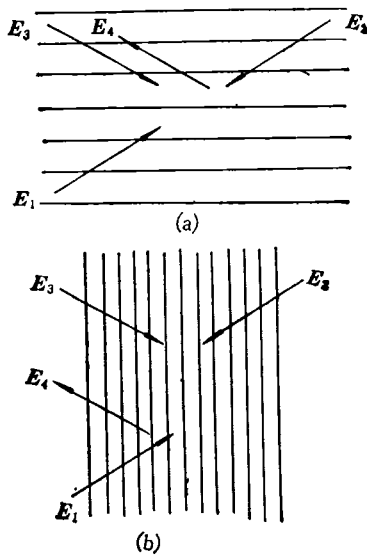


图 3

在多普勒系统中，由于原子运动而产生多普勒频移。因此，原子能同时与三束入射光共振的条件为

$$\omega - \omega_0 - \mathbf{K}_i \cdot \mathbf{v} = 0, \quad (3)$$

这里  $i = 1, 2, 3$ ,  $\mathbf{v}$  为原子的运动速度。在  $\mathbf{K}_i$  与  $\mathbf{K}_1$  的夹角很小的情况下，只有沿入射光传播方向速度为零的原子（即  $\mathbf{K}_i \cdot \mathbf{v} = 0$ ）能同时与三束光有效作用。也就是说，并不是全部原子都对混频信号有贡献，而是只有满足  $\mathbf{K}_i \cdot \mathbf{v} = 0$  的原子才能与入射光有效作用而产生混频信号。这种入射光对原子速度群的选择，使产生的混频信号具有消除多普勒效应的特性。即信号强度与入射光频率的关系曲线呈洛伦兹线

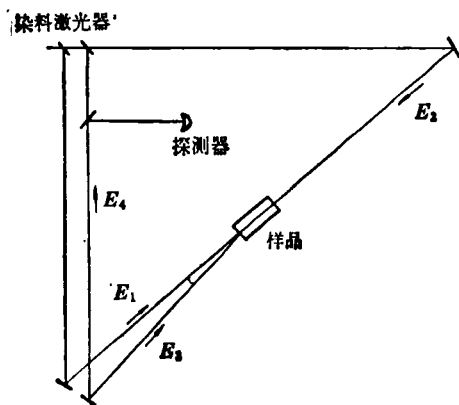


图 4

形，其中心频率在  $\omega = \omega_0$  处，其线宽为原子的自然线宽。

简并四波混频的标准实验装置如图 4 所示。P. F. Liao 等<sup>[2]</sup>曾在 Na 的  $D_2$  线 ( $\lambda = 5890 \text{ \AA}$ ) 观测到简并四波混频效应。图 5 为由  $3S_{1/2} (F = 2) \rightarrow 3P_{3/2} (F = 3)$  跃迁产生的混频信号强度与入射光频率的关系。在低的泵光功率下，线宽约为 20 MHz。当泵光功率加大时，线宽亦随之加宽，并产生谱线分裂<sup>[3]</sup>，但其线宽均远小于系统的多普勒增宽。此实验证实了简并四波混频具有消除多普勒效应的特性。

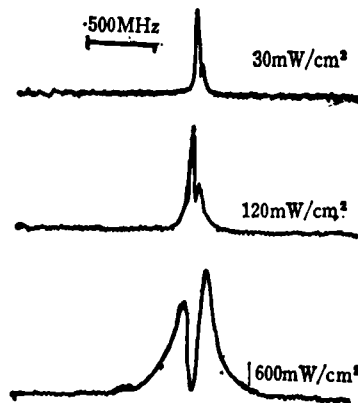


图 5

## 二、稳态双光子简并四波混频

双光子简并四波混频的物理机制如下：原子分别从反向前进的第 1, 2 两束光中各吸收一个光子，产生以  $2\omega$  频率振动的双光子相干  $\rho_{31}$ （见图 6）。由于  $\rho_{31} \propto e^{i[(\mathbf{K}_1 + \mathbf{K}_2) \cdot \mathbf{r} - 2\omega t]}$ ，而

$$\mathbf{K}_1 + \mathbf{K}_2 = 0,$$

因此  $\rho_{31}$  具有空间均匀性，即  $\rho_{31}$  与原子的位置无关。第 3 束光为试探光。此试探光与  $\rho_{31}$  作用，通过双光子参量过程感生出频率为  $\omega$  的混频信号。混频信号沿试探光的反向传播。

双光子简并四波混频同样具有消除多普勒线宽的特性<sup>[4]</sup>。因为产生双光子共振的条件为  $2\omega - \Omega_{31} - (\mathbf{K}_1 + \mathbf{K}_2) \cdot \mathbf{v} = 0$ ，（4）这里  $\Omega$  为  $|1\rangle, |3\rangle$  态间的共振频率。由于反向激发，即  $\mathbf{K}_1 + \mathbf{K}_2 = 0$ ，使得当  $2\omega = \Omega_{31}$  时，所

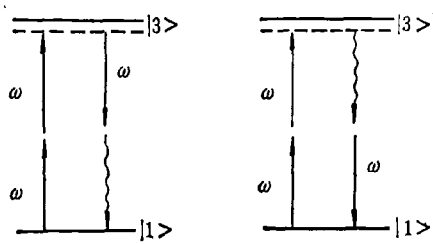


图 6

有速度的原子都产生双光子跃迁。换句话说，共振条件与原子的运动速度无关，因此此过程可以消除多普勒影响。

下面，我们对双光子与单光子简并四波混频进行比较。首先，与单光子简并四波混频不同的是在双光子简并四波混频的过程中，并不存在空间调制的布居光栅。反之，双光子相干  $\rho_{31}$  在空间是均匀分布的。其次，虽然单光子与双光子简并四波混频都能产生消除多普勒效应的光谱，但在双光子简并四波混频中，多普勒效应的消除是通过原子与反向前进的两束光作用，使其多普勒频移相互抵消而产生的。在这情况下，所有速度的原子都对混频信号有贡献。这与单光子简并四波混频中，由于入射光对原子速度群的选择而产生消除多普勒效应的光谱是有本质上差别的。

### 三、瞬态双光子简并四波混频

下面介绍用瞬态双光子简并四波混频的方法，测量双光子跃迁的横向弛豫时间。瞬态双光子简并四波混频的过程如图 7 所示。在  $t = 0$  时，原子与反向传播的抽运脉冲  $E_1$  及  $E_2$  同时作用，产生双光子相干  $\rho_{31}$ 。此双光子相干是以  $T_2$  的特征时间弛豫。在  $t = \tau$  时，试探脉冲  $E_3$  与原子系统作用，感生出与试探脉冲反向前进的混频信号脉冲。由于  $t = \tau$  时的双光子相干  $\rho_{31} \propto e^{-\tau/T_2}$ ，因此，试探脉冲感生的混频信号的振幅亦正比于  $e^{-\tau/T_2}$ 。通过测量信号强度与时间延迟  $\tau$  的关系，可以得到双光子跃迁的横向弛豫时间  $T_2$ 。

Liao 等<sup>[5]</sup>曾用瞬态双光子简并四波混频测物理

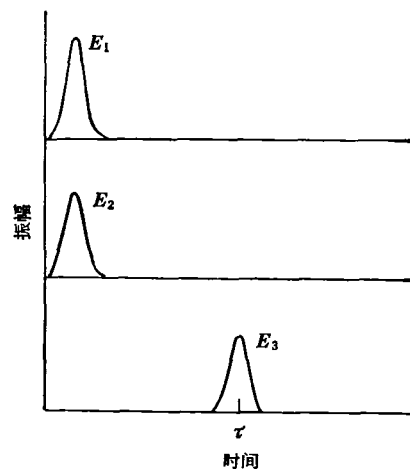


图 7

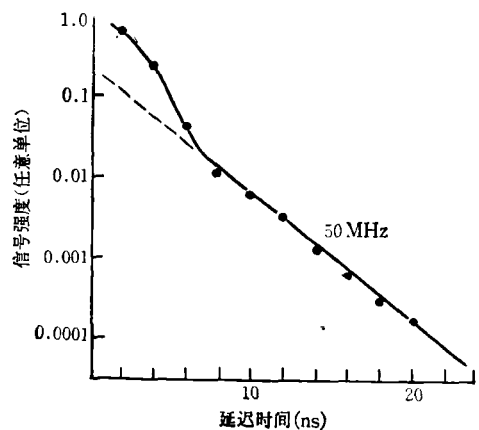


图 8

量 Na 在惰性气体中由碰撞引起的双光子横向弛豫时间。入射光的波长为  $5787\text{\AA}$ 。此激光可以感生  $3s$  至  $4d$  的双光子跃迁。图 8 为缓冲气体氖的气压为  $0.8\text{Torr}$  时，混频信号强度与延迟时间的关系。曲线的起始部分是由于试探脉冲与抽运脉冲重叠而产生的。曲线的后段，混频信号以衰变时间  $T_2/2$  为  $3.2\text{ns}$  的指数函数衰变。这对应于线宽为  $50\text{MHz}$  的洛伦兹线形。瞬态双光子简并四波混频还被用来研究  $\text{SF}_6$  分子内的弛豫过程<sup>[6]</sup>。

本文介绍了由简并四波混频产生的消除多普勒效应的光谱，并着重强调了其中的物理意义。作为研究原子及分子光谱的一种新的手

(下转第 395 页)