

测量原子里德堡态的新方法 ——双光子共振非简并四波混频^①

孙江^② 黄蕊 郭庆林 傅广生 傅盘铭^a

(河北大学物理学院 河北省保定市 071002)

^a(中国科学院物理研究所光物理实验室 北京市 100080)

摘 要 本文介绍了一种测量原子里德堡态的新方法——具有中间态的双光子共振非简并四波混频, 与现代实验方法不同, 该方法是纯光学的方法, 其光路简单, 检测的是相干光, 而不是电子或离子信号。当用窄带宽的激光时, 该技术对里德堡能级的窄光谱结构可以获得消多普勒的分辨率。

关键词 四波混频, 里德堡态, 原子。

中图分类号: O433.5⁺ 4

文献标识码: A

文章编号: 1004-8138(2006) 05-1088-04

1 前言

人们对里德堡态的研究已经有很长的历史了。近来对主量子数 n 很大的里德堡态光谱学又产生了日益增加的兴趣。从基本的物理观点来看, 精确地测量里德堡态的能级、寿命、电离几率、斯塔克和塞曼效应等等, 能够确定许多原子常数, 诸如核心的极化率、组态相互作用、精细结构的分裂等等。这些参数可由相当好的近似计算得到, 因此实验测量给理论提供了很有意义的检验^[1]。

由于里德堡态的能级寿命很长, 利用里德堡态发出的荧光来直接探测里德堡态是很困难的, 现代实验技术通过利用激光产生特定的里德堡态, 然后经电场电离、光电离或碰撞电离来探测电子或离子信号来研究里德堡态的。但这些检测方法都不是纯光学方法, 检测过程比较复杂^[2]。

最近, 出现了一种新的纯光学的测量原子里德堡态的方法——双光子共振非简并四波混频(NFWM)^[1,3]。该方法是纯光学的方法, 其光路简单, 检测的是相干光, 而不是电子或离子信号。当用窄带宽的激光时, 该技术对里德堡能级的窄光谱结构可以获得消多普勒的分辨率。本文将对其进行介绍。

2 里德堡态的传统测量方法

里德堡态^[1,3]是原子或分子中电子跃迁到主量子数 n 较高的轨道上所形成的高激发电子态。这时, 这个处于外层的电子离原子实很远, 可以近似的看作一个电子在一个电荷为 $+e$ 的库仑场中运动, 不存在贯穿轨道, 即为类氢原子。里德堡原子中, 被激发的电子的轨道半径大致等于 $n^2 a_0$, 其中 n 是主量子数, a_0 是玻尔半径。于是, 里德堡原子被激发的电子只是非常弱地被核心所束缚, 因而很容易被外场所扰动。而高激发电子的辐射寿命与 n^3 成正比。由于被激发电子的轨道很大, 所以具有大 n 值的两个邻近的里德堡态之间的跃迁几率非常高。里德堡原子间的相互作用也非常强。上述

① 河北省教育厅科研计划(批准号: 2005127)资助的课题

② 联系人, 手机: (0) 13102997930; E-mail: hdsunjiang@163.com

作者简介: 孙江(1973—), 男, 河北省保定市人, 河北大学博士后, 副教授, 从事非线性光学和原子分子物理方面的研究。

收稿日期: 2006-06-28; 接受日期: 2006-07-11

特性使里德堡原子的研究变得非常有意思。

早期对里德堡态原子的激发大多利用气体放电或紫外单光子吸收方法。可调谐激光器的应用使里德堡原子的研究工作得到了新的发展。利用两束或两束以上可调谐激光分步激发, 可以使单一的里德堡态得到布居。原子被激发到里德堡态可以再吸收光子而电离。这种激光分步激发和电离的方法在 20 世纪 70 年代后期形成共振电离光谱学。这一光谱技术广泛应用于原子高激发态的实验研究工作。近年来, 借助于高强度可调谐激光, 对里德堡态的激发较多地使用了双光子吸收过程。

对原子里德堡态的检测, 多通过光电离和电子倍增方法检测电子或离子。在热管炉或热离子二极管中, 碰撞电离也是检测里德堡态的一种有效方法。检测里德堡态原子最有效的方法是场电离的方法。原子在外电场强度大于经典场电离限时电离, 在较强的电场中, 电离速率足以使里德堡态在辐射衰变以前全部离化。利用脉冲电场使原子电离并用电子倍增方法检测电子或离子, 是近年来广泛使用的一种检测技术。

3 双光子共振非简并四波混频测量 Ba 原子的里德堡态

四波混频是指有 4 个相互作用的光波参与的非线性过程^[1]。在弱相互作用情况下, 这是一个三阶参量过程, 决定作用过程的是非线性介质的三阶极化强度。与二阶过程不同, 不管介质是否具有反演对称性, 三阶过程在所有介质中都是允许的。由于四波混频在各种介质中都很容易被观测到, 而且变化形式很多, 所以四波混频已经得到许多很有意义的应用。用它来把可调谐相干光源的频率范围扩展到红外和紫外。在简并的情况下, 四波混频对于自适应光学中的波前再现是很有用途的。尤为重要的是, 在材料研究中共振四波混频技术是强有力的光谱和分析工具。共振增强的简并四波混频和非简并四波混频是研究分子和原子的重要工具。

将具有共振中间态的双光子共振非简并四波混频应用于原子里德堡态的测量, 它的优点在于其检测的不是里德堡态发出的荧光, 而是中间态和基态这两个强耦合态之间跃迁而产生的相干辐射——四波混频信号。在双光子共振非简并四波混频中, 中间态的共振增强可以提高信号强度几个数量级。下面是它的测量原理^[4]。

具有共振中间态的双光子共振非简并四波混频是一个有三束入射光参加作用的三阶非线性过程。它的光路如图 1(a) 所示。光束 2 和 2' 具有相同的频率 ω_2 并成一个很小的夹角 θ , 光束 1 具有频率 ω_1 频率沿与光束 2 几乎相反的方向入射到样品上。

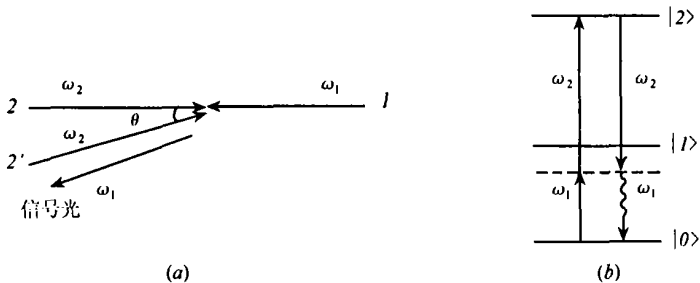


图 1 双光子共振非简并四波混频

考虑一个如图 1(b) 所示的级联三能级系统, 基态 $|0\rangle$ 和中间态 $|1\rangle$ 之间、中间态 $|1\rangle$ 和激发态 $|2\rangle$ 之间分别通过共振频率 Ω_1 、 Ω_2 耦合, 基态 $|0\rangle$ 与激发态 $|2\rangle$ 之间的跃迁是偶极禁戒的。如果 $\omega \approx \Omega_1$, $\omega \approx \Omega_2$, 则光束 1 引起 $|0\rangle$ 到 $|1\rangle$ 的跃迁, 光束 2 引起 $|1\rangle$ 到 $|2\rangle$ 的跃迁。这是一个双光子跃迁过程, 光束 1、2 通过双光子跃迁感生基态 $|0\rangle$ 和激发态 $|2\rangle$ 之间的相干。这个双光子相干可以通过光束 2' 来进行探测, 从而产生了频率为 ω 沿光束 2' 几乎相反的方向传播的 NFM 信号光。

NFWM 信号的强度 I 可以表达为:

$$I \propto \frac{1}{(\Gamma_{10}^2 + \Delta_1^2) [\Gamma_{20}^2 + (\Delta_1 + \Delta_2)^2]} \quad (1)$$

式中: $\Delta_1 = \Omega - \omega$, $\Delta_2 = \Omega - \omega$, 为原子的偶极跃迁频率 Ω 与入射光频率 ω 的失谐量, Γ_{n0} 为能级 $|n\rangle$ 和 $|0\rangle$ 之间的横向弛豫速率。从上式可以看出, 如果我们改变入射光的频率, 当入射光 1, 2 的频率之和 $\omega + \omega$ 与原子的偶极跃迁频率之和 $\Omega + \Omega$ 相同时 (即双光子共振), NFWM 信号会出现一个峰值, 信号峰的线形为洛仑兹线形, 线宽 (FWHM) 为 $2\Gamma_{20}$ 。在具体实验中, 一般固定频率 ω 改变入射光的频率 ω , 来测量 NFWM 信号的强度, 就可以得到 NFWM 的频谱, 频谱中信号峰对应的入射光频率即为原子的偶极跃迁频率 Ω 。通过测量信号峰的线宽可以获得能级 $|2\rangle$ 和 $|0\rangle$ 之间的横向弛豫速率 Γ_{20} , 这是传统测量方法不能测到的。

下面是一个使用具有共振中间态的双光子共振非简并四波混频研究 Ba 原子的里德堡态的具体实验^[4], 实验选取 Ba 原子的基态 $6s^2 1S_0$ 作为 $|0\rangle$, 中间态 $6s6p \ ^1P_1$ 作为 $|1\rangle$, 里德堡态 ($6sns \ ^1S_0$, $6snd \ ^1D_2$ 和 $6snd \ ^3D_2$) 作为 $|2\rangle$, 组成了图 1(b) 中所示的三能级系统。在冲入氩缓冲气体的条件下, 将放在不锈钢热管炉 (样品炉) 中的金属钡加热, 使之产生蒸汽。使用 Quanta-Ray ND-YAG 激光器的二次谐波泵浦染料激光器 Laser 1, 产生频率为 ω 的激光束 $L1$ 作为光束 1。使用 Quanta-Ray ND-YAG 激光器的三次谐波泵浦染料激光器 Laser 2, 产生频率为 ω 的激光 $L2$, 将 $L2$ 分束后形成了图 1(a) 中的入射光束 2 和 2'。光束 1 和光束 2 的方向几乎相反, 光束 1 和光束 2 成一个大约 0.5° 的夹角在热管炉中部交叉。具有频率 ω 的信号光沿与光束 2' 几乎相反的方向传播, 被光电二极管探测, 然后引入信号平均器 (boxcar) 做数据平均。用一台计算机做数据处理和控制步进马达以改变 Laser 2 的激光输出波长。

在实验中, 固定频率 ω , 在第二个染料激光器 Laser 2 的整个可调频率范围内扫描 ω 。由于相位匹配可以在很宽的频率范围内实现, 所以在整个的扫描过程中不需要对光路配置进行调整。为了避免在 $6s^2 1S_0 - 6s6p \ ^1P_1$ 共振跃迁频率处的强吸收, 可将 $L1$ 的输出波长从精确共振位置偏调 0.04nm 。图 2 为 NFWM 信号强度对 $L1$ 输出波长 λ (417—434nm) 的关系曲线。图中的 NFWM 光谱显示了 Ba 原子对应于偶宇称 $J=0$ 的 $6sns \ ^1S_0$ ($n=16-31$)、 $J=2$ 的 $6snd \ ^1D_2$ ($n=14-36$) 和 $6snd \ ^3D_2$ ($n=15-29$) 里德堡线系。图中全部谱线的包络线反映了 Laser 2 激光器中染料的荧光谱的形状。通过测量各里德堡态峰值对应的波长位置, 可以得到里德堡线系能级的能量。

4 结论

综上所述, 对比于现代实验技术, 双光子共振非简并四波混频技术具有显著的特点。第一, 非简并四波混频对位相匹配条件要求不严格, 可以在很大的频率范围内实现位相匹配, 从而在整个扫描过程中不需要对光路进行调节。第二, 信号是相干光, 易于检测。中间态的共振增强可以将信号强度提高几个数量级。第三, 该方法是纯光学方法, 所采用的光路配置简单, 易于实现。第四, 当使用窄带激光器时, 双光子共振非简并四波混频可以获得消多普勒的高分辨率。这是因为在其所采取的光路配置中, 只有沿 z 轴具有速度 $v \approx \Delta_1/k_1$ 的原子群对四波混频信号有贡献。因此, 双光子共振非简并四波混频技术已经成为了测量原子里德堡态的一种新的有效手段。

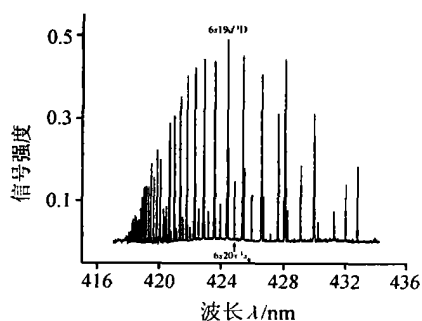


图 2 NFWM 信号强度对 Laser 2 输出波长 λ_2 的关系曲线

参考文献

- [1] Shen Y R. *The Principles of Nonlinear Optics*[M]. New York: John Wiley & Sons, Inc. 1984.
- [2] 张森. 高激发态原子及其与辐射的相互作用[J]. 物理, 1990, **19**(11): 654—658.
- [3] WANG Y B, JIANG Q, Li L *et al.* Observation of Rydberg Series in Sodium Vapour by Two-Photon Resonant Nondegenerate Four-Wave Mixing[J]. *Chinese Physics Letters*, 2001, **18**(9): 1202—1204.
- [4] Sun J, Zuo Z C, Mi X *et al.* Two-Photon Resonant Four-Wave Mixing in Dressed Atomic System[J]. *Phys. Rev. A*, 2004, **70**(5): 053820.
- [5] Sun J, Jiang Q, Mi X *et al.* Suppression and Enhancement in Parametric Two-Photon Resonant Nondegenerate Four-Wave Mixing Via Quantum Interference[J]. *Chinese Physics Letters*, 2004, **21**(1): 306—309.
- [6] Zuo Z C, Sun J, Mi X *et al.* Three-Photon Resonant Six-Wave Mixing with Phase-Conjugation Geometry in Na Atomic Vapour [J]. *Chinese Physics Letters*, 2005, **22**(7): 1664—1667.

A New Method for the Measurement of Atomic Rydberg State ——Two-Photon Resonant Nondegenerate Four-Wave Mixing

SUN Jiang HUANG Rui GUO Qing-Lin FU Guang-Sheng FU Pan-Ming^a

(Physical Science & Technology College, Hebei University, Baoding, Hebei 071002, P. R. China)

^a(Laboratory of Optical Physics, Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100080, P. R. China)

Abstract A new method for the determination of atomic Rydberg state by two-photon resonant nondegenerate four-wave mixing (NFWM) with a resonant intermediate state was established. Differing from other experiment techniques, this method is a pure optical technique. Instead of detecting electrons or ions, the signal here is a coherent light. Two-photon resonant NFWM is a Doppler-free spectroscopy by using the narrow bandwidth of incident laser beams.

Key words Four-Wave Mixing, Rydberg State, Atom.

关于赠送作者样刊和发放稿酬的通知

各有关作者:

从 2006 年第 1 期起, 本刊赠送作者发表自己论文的当期刊物(样刊), 均按篇赠送 2 本样刊, 用普通印刷品邮寄给作者联系人, 遗失不补(因系赠品)。若遗失或作者另有需要, 请在发表之日起 2 个月之内汇款购买(25 元/本, 免收挂号邮寄费), 逾期不再办理。

由于普通印刷品邮寄的送达时间不稳定, 若作者急需, 请预交特快专递费(30 元/件)。

给作者发放的稿酬均邮寄给联系人, 请各位联系人接到邮局通知后, 务必及时到邮局领取。若 2 个月未领, 被邮局退回, 本刊不再补发。

特此通知

光谱实验室编辑部

汇款购买地址: 北京市 81 信箱 66 分箱 刘建林, 邮编: 100095