

# 亚自然线宽双光子光谱学

黄永楷

(中国科学院上海光机所)

**提要:** 本文叙述了亚自然线宽双光子光谱学的基本原理。分析了观察亚自然线宽的最佳条件。给出了衰减多脉冲光激发的双光子吸收几率的表达式。提出了一种简单易行的实验方案。

## Subnatural linewidth two-photon spectroscopy

Huang Yongkai

(Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Academia Sinica)

**Abstract:** The principle of the subnatural linewidth two-photon spectroscopy is described in this paper. The optimum conditions for observing the subnatural linewidth are analyzed. The expression of two-photon absorption probability for the decaying optical pulse series excitation is given and a simple experimental method is suggested.

### 一、引言

在高分辨光谱学的研究中,过去限制分辨率提高的障碍主要是多普勒加宽。但这一障碍目前已由非线性饱和吸收光谱法<sup>[1]</sup>、双光子光谱法<sup>[2]</sup>和光学 Ramsey 法<sup>[3]</sup>等所打破,并在实验上获得了完全的成功。但以上方法的分辨率极限仍受自然线宽所限制。为了要研究被自然线宽,特别是被短寿命能级掩盖的谱线细节,深入了解微观粒子内部更细微的物理过程,创立一种能突破自然线宽限制的超高分辨光谱法,显然是十分必要的。

1980年 Meyster 等人<sup>[4]</sup>根据两非稳态

之间在强相干激发下的跃迁几率表示式的洛伦兹因子中,自发衰减常数不是一般原子物理公式中的两能级衰减常数之和,而是两者之差的这一结果,提出了将该效应用于高分辨光谱研究的可能性。接着, Knight 等人<sup>[5]</sup>又将这一思想向前推进了一步,使 Meyster 等人的结果不仅适用于两非稳能级,而且也适用于一般基态和激发态之间的跃迁。其关键条件是,激发相干光脉冲必须是指数衰减的,其衰减常数大致与激发态的相同。这样便可获得比自然线宽更窄的光谱分辨率。后来, Coleman 等人<sup>[6]</sup>又把这一结果推广到相干多脉冲衰减激发的情形,发现在

收稿日期: 1982年6月7日。

这种条件下所获得的跃迁几率公式中出现了一个相干交叉项, 并且认为, 这与光学 Ramsey 效应同出于一个物理来源。这些思想的发展, 为亚自然线宽光谱学开创了可能性。

本文认为要获得较好的实验效果, 应该选用双光子跃迁, 并在理论上推导了衰减多脉冲激发的双光子跃迁几率的表达式, 同时提出了一种可能的实验方案。

## 二、衰减多脉冲激发下的双光子跃迁几率

由于原子或分子从两相向传播光束中各吸收一个光子引起的双光子跃迁没有一阶多普勒频移, 因而也就不存在因原子运动导致各脉冲激发原子之间的相移问题。所以, 利用双光子跃迁来观察原子衰减多脉冲激发的量子相干变窄效应是最为有利的。图 1 示出了这一激发方式的原理图。 $\omega_L$  为激光频率,  $\Delta\omega = \omega_{21} - \omega_L$ ,  $\Delta\Omega = \omega_{31} - 2\omega_L$ ,  $\omega_{21}$  和  $\omega_{31}$  分别为能级 2 到能级 1 和能级 3 到能级 1 的跃迁频率。

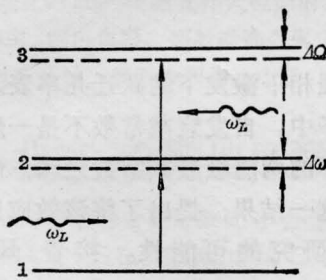


图 1 双光子跃迁示意图

在推导衰减多脉冲激发双光子跃迁的几率幅度之前, 先作以下假定:

(1) 激发场足够弱, 系统的行为可用微扰论处理。

(2) 没有单光子跃迁(宇称禁戒)。

(3) 两束激发光的频率  $\omega_L$  相同、传播方向相反, 幅度  $\varepsilon(t)$  是衰减脉冲调制的, 衰减因

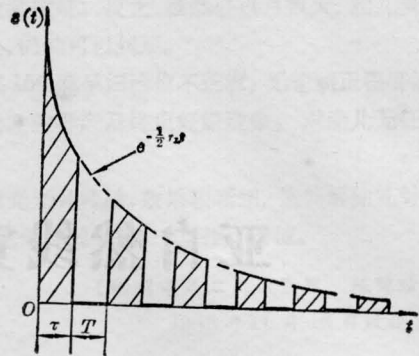


图 2 激光衰减多脉冲调制  
 $\tau$ —脉宽;  $T$ —延迟时间

数为  $e^{-\frac{1}{2}r_L t}$ , 并且表示为

$$\varepsilon(t) = \varepsilon_1 e^{-\frac{1}{2}r_L t} \cos \omega_L t \cdot \theta(t) \quad (1)$$

式中  $\theta(t)$  为 Heaviside 函数<sup>[7]</sup>;  $\varepsilon_1$  为初始光场幅度;  $r_L$  为激光场衰减系数, 如图 2 所示。当  $t$  处于  $(n-1)(T+\tau) < t < n(T+\tau)$  时,  $\varepsilon(t)$  存在; 当  $t$  为其它值时,  $\varepsilon(t) = 0$ 。原子受到光场的微扰能显然为

$$W(r, t) = e \varepsilon r = -e D \quad (2)$$

式中  $D$  为原子跃迁的偶极矩;  $e$  为电子电荷;  $r$  为电子到原子核的距离。由含时薛定谔方程可分别推得能级 2 和能级 3 的运动方程为

$$\dot{C}_2(t) = -\frac{i}{\hbar} W_{12}(t) e^{-iE_{12}t/\hbar} C_1(t) \quad (3)$$

$$\dot{C}_3(t) = -\frac{i}{\hbar} W_{23}(t) e^{-iE_{23}t/\hbar} C_2(t) \quad (4)$$

式中  $W_{12}(t)$  和  $W_{23}(t)$  分别为相应能级的跃迁矩阵元, 即

$$\begin{aligned} W_{12}(t) &= \varepsilon(t) \langle 1 | D | 2 \rangle \\ &= \frac{1}{2} \langle 1 | D | 2 \rangle \varepsilon_1 e^{(-i\omega_L - \frac{1}{2}r_L)t} \theta(t), \end{aligned} \quad (5)$$

$$\begin{aligned} W_{23}(t) &= \varepsilon(t) \langle 2 | D | 3 \rangle \\ &= \frac{1}{2} \langle 2 | D | 3 \rangle \varepsilon_1 e^{(-i\omega_L - \frac{1}{2}r_L)t} \theta(t), \end{aligned} \quad (6)$$

考虑到激发能级的衰减, 因此, 我们将用  $E_i - \frac{1}{2} r_i$  来代替方程(3)和(4)中的  $E_i$ 。利用初始条件, 即当  $t=0$  时, 粒子全部处于基态,

故  $C_1(t) = C_1(0) = 1$ ,  $C_2(t) = C_2(0) = 0$ 。于是, 由(3)和(5)式积分, 在旋波近似下<sup>[8]</sup>, 得  $C_2(t)$

$$\begin{aligned} &= -\frac{i}{2} \langle 1|D|2\rangle \varepsilon_1 \int_0^t e^{(i\Delta\omega + \frac{1}{2}r_{2L})t'} dt' \\ &= -\frac{i}{2} \frac{\varepsilon_1}{\left(i\Delta\omega + \frac{1}{2}r_{2L}\right)} \left[ e^{(i\Delta\omega + \frac{1}{2}r_{2L})t} - 1 \right]. \end{aligned} \quad (7)$$

式中  $\Delta\omega = \omega_{21} - \omega_L$ ,  $r_{2L} = r_2 - r_L$ 。由于双光子跃迁需计算到二级微扰, 利用(4)、(6)和(7)式得第  $n$  个光脉冲对几率幅度  $C_3(t)$  的贡献, 并表示为

$$\begin{aligned} C_3^{(n)}(t) &= -\frac{i}{2} \langle 2|D|3\rangle \varepsilon_1 \\ &\quad \times \int_{(n-1)(T+\tau)}^{(n-1)(T+\tau)+\tau} e^{(i\Delta\omega' + \frac{1}{2}r_{2L})t'} C_2(t') dt' \\ &\approx \frac{1}{4} \frac{\langle 1|D|2\rangle \langle 2|D|3\rangle \varepsilon_1^2}{\left(i\Delta\omega + \frac{1}{2}r_{2L}\right)\left(i\Delta\Omega + \frac{1}{2}\Gamma\right)} \\ &\quad \times \left\{ \left[ e^{(i\Delta\Omega + \frac{1}{2}\Gamma)\tau} - 1 \right] e^{(i\Delta\Omega + \frac{1}{2}\Gamma)(n-1)(T+\tau)} \right\} \end{aligned} \quad (8)$$

式中  $\Delta\omega' = \omega_{32} - \omega_L$ ,  $\Delta\Omega = \omega_{31} - 2\omega_L$ ,  $\Gamma = r_3 - 2r_L$ 。必须指出, 我们在做上式积分时, 只保留了双光子跃迁项, 而略去了梯级跃迁项, 这两者分别相应于(7)式的第一项和第二项。并且由于  $r_2 \ll r_3$ , 对于  $t > r_2^{-1}$ , 我们在  $\Gamma$  中也略去了  $r_2$ 。将各个激发脉冲的贡献加起来即可求得双光子跃迁终态激发的几率幅度为

$$\begin{aligned} C_3(t) &= \frac{1}{4} \frac{\langle 1|D|2\rangle \langle 2|D|3\rangle \varepsilon_1^2}{\left(i\Delta\omega + \frac{1}{2}r_{2L}\right)\left(i\Delta\Omega + \frac{1}{2}\Gamma\right)} \\ &\quad \times \left[ e^{(i\Delta\Omega + \frac{1}{2}\Gamma)\tau} - 1 \right] \\ &\quad \times \sum_{n=1}^N e^{(i\Delta\Omega + \frac{1}{2}\Gamma)(n-1)(T+\tau)} \\ &= \frac{1}{4} \frac{\langle 1|D|2\rangle \langle 2|D|3\rangle \varepsilon_1^2}{\left(i\Delta\omega + \frac{1}{2}r_{2L}\right)\left(i\Delta\Omega + \frac{1}{2}\Gamma\right)} \\ &\quad \times \left[ e^{(i\Delta\Omega + \frac{1}{2}\Gamma)\tau} - 1 \right] \end{aligned}$$

$$\times \left[ \frac{e^{(i\Delta\Omega + \frac{1}{2}\Gamma)N(T+\tau)} - 1}{e^{(i\Delta\Omega + \frac{1}{2}\Gamma)(T+\tau)} - 1} \right], \quad (9)$$

由(9)式我们便可求得双光子跃迁在多脉冲光激发下的几率为

$$P(t) = |C_3(t)|^2 e^{-r_3 t} \quad (10)$$

下面我们讨论两个特例。

1) 等幅多脉冲光激发。这就是说, 我们不考虑激光和能级的衰减, 即令  $r_L = r_2 = r_3 = 0$ , 由(9)式和(10)式得

$$\begin{aligned} P(t) &= \frac{1}{16} \left[ \frac{\langle 1|D|2\rangle \langle 2|D|3\rangle \varepsilon_1^2}{\Delta\omega \Delta\Omega} \right]^2 \\ &\quad \times [2 - (e^{i\Delta\Omega\tau} + e^{-i\Delta\Omega\tau})] \\ &\quad \times \left[ \frac{2 - (e^{i\Delta\Omega N(T+\tau)} + e^{-i\Delta\Omega N(T+\tau)})}{2 - (e^{i\Delta\Omega(T+\tau)} + e^{-i\Delta\Omega(T+\tau)})} \right] \\ &= \frac{1}{8} \left[ \frac{\langle 1|D|2\rangle \langle 2|D|3\rangle \varepsilon_1^2}{\Delta\omega \Delta\Omega} \right]^2 \\ &\quad \times (1 - \cos \Delta\Omega\tau) \left( \frac{1 - \cos \Delta\Omega N(T+\tau)}{1 - \cos \Delta\Omega(T+\tau)} \right) \\ &= \frac{1}{8} \left[ \frac{\langle 1|D|2\rangle \langle 2|D|3\rangle \varepsilon_1^2}{\Delta\omega} \right]^2 \\ &\quad \times \left( \frac{\sin\left(\frac{\Delta\Omega\tau}{2}\right)}{\frac{\Delta\Omega}{2}} \right)^2 \\ &\quad \times \left( \frac{\sin[\Delta\Omega N(T+\tau)/2]}{\sin[\Delta\Omega(T+\tau)/2]} \right)^2 \end{aligned} \quad (11)$$

由(11)式可见, 它与普通光学中的多缝衍射公式十分相像<sup>[9]</sup>, 其中  $\sin(\Delta\Omega\tau/2)/(\Delta\Omega/2)$  相应于单缝因子, 而

$$\sin \left[ \frac{\Delta\Omega N(T+\tau)}{2} \right] / \left[ \frac{\Delta\Omega N(T+\tau)}{2} \right]$$

则相应于多缝因子。由此可见, 利用等幅多脉冲光激发可以使谱线变窄, 达到提高光谱分辨率的目的。如果我们令脉冲数  $N=2$ , 便可得到相应于双缝干涉的情形, 这时

$$\begin{aligned} P(t=T+2\tau) &= \left( \frac{\langle 1|D|2\rangle \langle 2|D|3\rangle \varepsilon_1^2}{\Delta\omega} \right)^2 \\ &\quad \times \left( \frac{\sin \Delta\Omega\tau/2}{\Delta\Omega/2} \right)^2 (\cos^2(\Delta\Omega(T+\tau)/2)). \end{aligned} \quad (12)$$

此式与[3]的结果相一致。

2) 单脉冲衰减激发。这时令  $T \rightarrow 0$ ,  $\tau \rightarrow 0$ ,  $n \rightarrow \infty$ ,  $n\tau = t$ , 应用 L'Hôpital 规则取极限, 由 (9) 式得

$$C_3(t) = \frac{1}{4} \frac{\langle 1|D|2\rangle\langle 2|D|3\rangle\epsilon_1^2}{\left(i\Delta\omega + \frac{1}{2}r_{2L}\right)\left(i\Delta\Omega + \frac{1}{2}\Gamma\right)} \times \left(e^{(i4\Omega + \frac{1}{2}\Gamma)t} - 1\right), \quad (13)$$

于是

$$P(t) = \frac{1}{16} \frac{(\langle 1|D|2\rangle\langle 2|D|3\rangle\epsilon_1^2)^2}{\left(\Delta\omega^2 - \frac{1}{4}r_{2L}^2\right)\left(\Delta\Omega^2 - \frac{1}{4}\Gamma^2\right)} \times \left[e^{\frac{1}{2}\Gamma t} \left(e^{\frac{1}{2}\Gamma t} - 2 \cos \Delta\Omega t + 1\right)\right]. \quad (14)$$

故当  $\Gamma = (r_3 - 2r_L) \rightarrow 0$  和  $\Delta\Omega = (\omega_{31} - 2\omega_L) \rightarrow 0$  时, 可获得锐共振。

由 (9) 式和以上两个特例的讨论可以看出, 利用衰减脉冲或衰减多脉冲光对原子或分子进行双光子激发, 不仅可以通过量子相干效应获得像古典光学多缝衍射效应那样的使谱线变窄的效果(因为线宽与缝数成反比), 而且通过匹配终态与激光衰减系数(即要求  $r_3 - 2r_L = 0$ ) 又可进一步使谱线变窄。达到分辨比自然线宽更小的那样的分辨率。但是, 当激光衰减系数  $r_L \gg r_3$  时, 对于单脉冲光激发而言, 线宽由 Fourier 变换极限决定, 即由测不准关系  $\Delta\omega\Delta t \sim 1$  决定; 而对多脉冲光激发而言, 则由延迟时间  $T$  决定<sup>[3]</sup>。

总之, 利用衰减多脉冲光作双光子相干激发, 既可消除多普勒加宽的影响, 又可通过量子相干和衰减系数的匹配进一步使谱线变窄, 这是这种方法的明显优点, 它将为亚自然线宽光谱学的研究开辟道路。

### 三、实验方案

利用单脉冲光作衰减系数的匹配激发是较易做到的, 我们不在此叙述。下面要谈的是我们提出的一种控制衰减多光脉冲的方法。问题的关键: 一是要求形成多光脉冲驻

波场; 二是要求多光脉冲的衰减包迹能够进行控制调节。看来一种可行的办法是利用电光开关或腔倒空技术将一线偏振激光脉冲注入一个谐振腔内, 如图 3 所示, 激光在输入该谐振腔之前为平行偏振光, 这时电光晶体上加有  $\lambda/2$  的偏压, 因此, 激光通过晶体之后偏振方向将旋转  $90^\circ$ , 成为垂直偏振光, 当光脉冲通过该晶体之后, 立即去掉偏压, 激光从镜 1 返回来后, 将沿腔的光轴方向传播, 并在其中产生周期的衰减振动。为了使衰减脉冲包迹具有实验要求的指数形式, 单靠调整腔的耦合损耗是不成的, 故必须在腔内附加一个具有可调吸收系数的线性吸收体。在我们的情况下, 虽然电光晶体和样品池本身就是一种吸收体, 但是它们的吸收系数不太好调, 因此我们在这个腔中又增加了一个吸收池, 它的密度可以控制, 其中的气体也可以是待测气体样品本身, 不过两者的密度不同。为了减少碰撞加宽, 样品池中气体的密度常保持很低, 而损耗吸收池则可以保持较高的密度。利用这种方法我们就可达到控制多光脉冲衰减包迹的目的。为了要在样品池中形成脉冲驻波场, 我们可将样品池放在腔镜的一端, 光脉冲在该镜反射时形成驻波, 如图 3 所示。双光子吸收的线型可通过荧光进行检测。这里必须指出的是, 为了减少频率噪声, 激光脉冲在送入吸收腔之前需要利用光学系统进行模匹配。

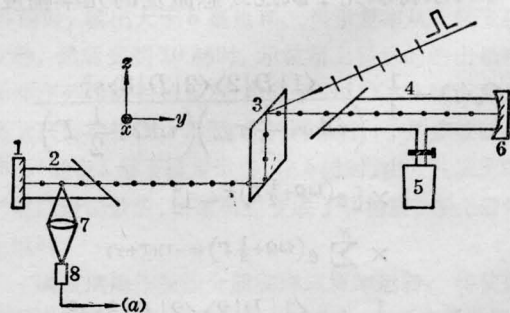


图 3 实验示意图

1—平面反射镜; 2—样品池; 3—电光晶体; 4—双光子吸收衰减池; 5—储气室; 6—球面反射镜; 7—荧光聚光镜; 8—接收器; (a)—到信号放大处理显示系统

以上讨论的方法适宜于对短寿命能级掩盖的谱线作高分辨光谱研究,它同光学 Ramsey 效应法<sup>[10]</sup>的主要区别在于,这种方法除了具有多脉冲量子相干变窄以外,还具有由激光衰减系数与能级衰减系数进行匹配激发而引起的谱线的进一步变窄。这是我们要强调的主要之点。

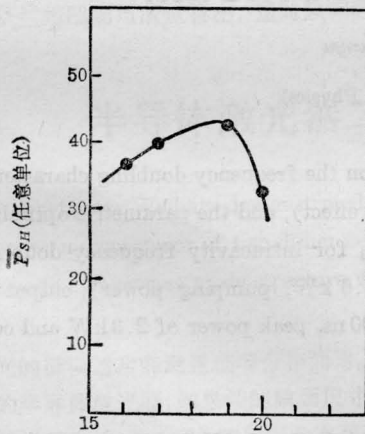
### 参 考 文 献

- [1] V. S. Letokhov; "High Resolution Laser Spectroscopy", Edit. by K. Shimoda, Springer-Verlag, 1976, Chapt. 4.  
 [2] N. Bloembergen, M. D. Levenson; "High Resolution Laser Spectroscopy", 1976, Chapt. 8.

- [3] M. M. Salour; *Annals of Physics*, 1978, **111**, 364~530.  
 [4] P. Mystre et al.; *Opt. Commun.*, 1980, **33**, No. 2, 153~157.  
 [5] P. L. Knight, P. E. Coleman; *J. Phys. B: Atom. Molec. Phys.*, 1980, **13**, 4345~4352.  
 [6] P. E. Coleman; *Opt. Commun.*, 1981, **36**, 127~130.  
 [7] J. Chamberlain; "The Principles of Interometric Spectroscopy", Chichester, 1979, P. 47.  
 [8] M. Sargent III et al.; "Laser Physics", Addison-Wesley, 1974, Chapt. 2~1.  
 [9] M. 玻恩, E. M. 沃耳夫; "光学原理", 上册, 第八章, 科学出版社, 1978 年。  
 [10] K. Teets et al.; *Phys. Rev. Lett.*, 1977, **38**, 760~764.

(上接第 200 页)

Mg:LN 晶体因吸收光发热,在晶体内部造成径向温度梯度,亦形成等效的热透镜,它将改变谐振腔的工作状态。故在谐振腔光学设计和调试时,应考虑 Mg:LN 晶体热光效应的影响<sup>[6]</sup>。



LN 与激光棒中心的间距(厘米)  
 图 5 二次谐波平均功率  $\bar{P}_{SH}$  与 LN 晶体在腔内位置的关系

实验中还观测到在一定泵浦功率下,为了获得平均功率最大的二次谐波,声光调制频率有一最佳范围。在我们实验条件下为 3 千赫左右。

当连续泵浦功率为 3.6 千瓦,声光调制

频率为 3 千赫, Mg:LN (15×15×10 毫米) 相位失配,输出腔镜在最佳耦合输出时,获得平均功率为 6 瓦的 1.06 微米基波输出。换上对 1.06 微米全反的输出腔镜, Mg:LN 在 115°C 非临界相位匹配时,获得平均功率达 2070 毫瓦,脉宽约 300 毫微秒,峰值功率为 2.3 千瓦的二次谐波输出,单程倍频效率为 34%。

Mg:LN 晶体在 0.53 微米平均功率大于 1 瓦时,有时晶体表面出现斑痕。这种表面损伤与晶体表面加工、增透膜材料、膜内光波模式等有关,为弄清其确切原因,尚待进一步研究。

实验中所用 Mg:LN 晶体是我所仲跻国等同志提供的,在此表示感谢。

### 参 考 文 献

- [1] R. Trebino; *Appl. Opt.*, 1981, **20**, No. 12, 2090.  
 [2] 李荫远,杨顺华;《非线性光学》,科学出版社,1974。  
 [3] R. L. Byer et al.; *Appl. Phys. Lett.*, 1981, **39**, No. 1, 17.  
 [4] R. G. Smith; *IEEE J. Quant. Electr.*, 1970, **6**, No. 4, 215.  
 [5] A. Stein et al.; *Appl. Phys. Lett.*, 1970, **16**, No. 9, 338.  
 [6] J. D. Barry et al.; *IEEE J. Quant. Electr.*, 1975, **11**, No. 8, 575.