

# 铷蒸气中的喇曼共振四波参量混频过程

王阿连 邹英华

(北京大学)

**提要:** 对铷蒸气中的喇曼共振四波参量混频过程进行了详细的实验观测和理论分析。获得了基本一致的结果。

## Raman-resonant four-wave parametric mixing process in rubidium vapour

Wang Alian, Zou Yinghua

(Beijing University)

**Abstract:** The experimental observation and theoretical analysis on the Raman-resonant four-wave parametric mixing process in rubidium vapour have been made. The theory agrees with the experimental results.

### 一、引言

我们在观测过热铷蒸气中受激电子喇曼散射过程<sup>[1]</sup>的同时,还接收到一个频率在 $6100 \text{ \AA}$ 附近可连续调谐的、相当强的激光信号。从它的调谐特性可以判断这信号是由喇曼共振四波参量混频过程(RFWM)产生的。RFWM与其他四波混频过程的区别在于:它是由一个泵浦光子和两个由受激电子喇曼散射过程(SERS)产生的斯托克斯光子参与的混频过程。因此在一定条件下观察金属蒸气的SERS过程时,往往可以看到它的存在<sup>[2]</sup>。但迄今为止,对该现象的详细观测的报导并不多<sup>[3]</sup>。我们在观测铷蒸气中SERS过程的

实验基础上,测量了RFWM过程产生的桔红色激光频率调谐特性、光强变化和光束的空间分布特性。

### 二、理论分析与计算

观测铷蒸气RFWM过程所涉及的能级和跃迁如图1所示。

在一定蒸气压条件下,调谐泵浦光频率 $\tilde{\nu}_L$ 从高频端分别接近 $5S_{1/2} \Rightarrow 6P_{1/2,3/2}$ 两条共振线,就可以观测到在一定频率区间内 $\tilde{\nu}_R$ 的桔红色激光输出。根据D. C. Hanna等人的推导<sup>[4]</sup>,一般四波混频过程的非线性极化强

收稿日期:1982年6月7日。

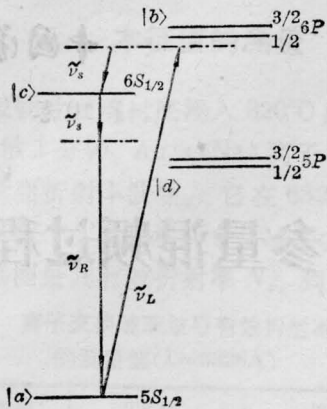


图1 铷原子的部分能级和跃迁

度矢量应具有如下形式:

$$\mathbf{P}_{NL}(\omega_\sigma) = \epsilon_\sigma \frac{3}{2} \epsilon_0 \chi_{RWM}^{(3)}(-\omega_\sigma; \omega_1, \omega_2, \omega_3) E_1 E_2 E_3 \quad (1)$$

所以对于 RFWM 过程:

$$\mathbf{P}_{NL}(\omega_R) = \epsilon_R \frac{3}{2} \epsilon_0 \chi_{RFWM}^{(3)}(-\omega_R; \omega_L, -\omega_s, -\omega_s) |E_s|^2 E_L \quad (2)$$

将其代入偶合波方程可求得以它为场源激发的  $I_R$  光场的表达式:

$$I_R = \frac{n_L}{n_R} \left( \frac{\tilde{\nu}_R}{2\tilde{\nu}_s} \right)^2 \frac{|\chi_R^{(3)}|^2}{|\chi_s^{(3)}|^2} \times \frac{I_s^2}{I_L} \left( \frac{1}{1 + \Delta K^2/g_s^2} \right) \quad (3)$$

其中  $\tilde{\nu}_s$ 、 $I_s$ 、 $g_s$ 、 $\chi_s^{(3)}$  分别代表 SERS 过程所产生的斯托克斯激光的频率、光强、增益和非线性极化率。在 [1] 中我们已完成了对它们的计算。

从(3)式可看出, RFWM 是受到相匹配条件制约的参量过程。  $\Delta K$  代表相匹配的程度:

$$\Delta K = K_R + 2K_s - K_L \quad (4)$$

其中

$$|K_i| = 2\pi\tilde{\nu}_i n_i \quad (5)$$

$n_i$  为非线性介质在频率  $\tilde{\nu}_i$  处的折射率, 可由 Sellemier 公式计算:

$$n_i = 1 + \frac{N r_e}{2\pi} \sum_j \frac{f_{ij}}{\tilde{\nu}_{j0}^2 - \tilde{\nu}_i^2} \quad (6)$$

式中  $r_e$  为波尔半径,  $f_{ij}$  为由基态到  $j$  的跃

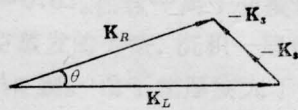
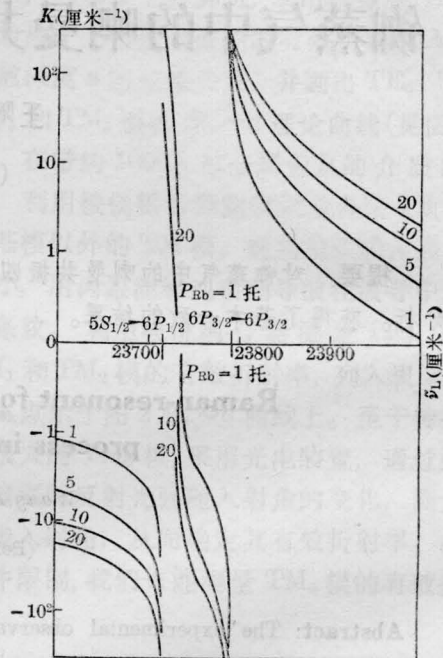
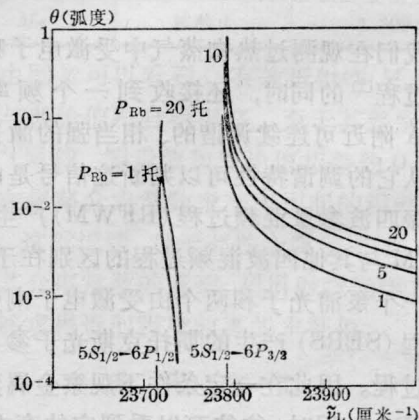


图2 相匹配的三角形关系



(a) 铷原子 RFWM 过程中有关相匹配的理论计算结果。纵坐标  $K = |K_R| + 2|K_s| - |K_L|$ 。当  $K \geq 0$  时 (23716~23733 厘米<sup>-1</sup>, 23793~24048 厘米<sup>-1</sup>) 能满足三角形关系, 在一定角度下可有  $\Delta K = 0$ 。当  $K < 0$  时, 不可能满足三角形关系



(b)  $\Delta K = 0$  时,  $K_L$  与  $K_R$  间夹角的计算结果

图 3

迁振子强度,  $\tilde{\nu}_{ig}$  为跃迁频率(以波数为单位)。当  $\Delta\mathbf{K}=0$  时, RFBM 有最大的光强输出。因此只要三个光场的波矢满足图 2 的三角形关系, 就可有  $\Delta\mathbf{K}=0$ 。显然, 只有当  $|\mathbf{K}_L| \leq |\mathbf{K}_R| + 2|\mathbf{K}_s|$ , 也即  $\tilde{\nu}_L$  位于共振线的高频侧时, 这种关系才有可能满足。 $I_R$  激光与泵浦方向的夹角(即  $\mathbf{K}_R$  与  $\mathbf{K}_L$  的夹角)  $\theta$  为:

$$\theta = \arccos \frac{K_R^2 + K_L^2 - 4K_s^2}{2K_R K_L} \quad (7)$$

根据(4)、(5)、(6)、(7)式, 我们计算了不同蒸气压条件下, 铷原子的 RFBM 过程中相位匹配情况和  $I_R$  光束的角锥半角随泵浦波长的变化如图 3 所示。

根据  $n$  阶非线性极化率公式<sup>[5]</sup>, 我们推得 RFBM 过程的极化率表达式为:

$$\begin{aligned} \chi_{RFBM}^{(3)}(-\omega_R; \omega_L, -\omega_s, -\omega_s) &= \frac{N}{6\hbar^3 \epsilon_0} \frac{e^4/81}{\Omega_{ac} - \omega_L + \omega_s + i\Gamma_{ac}} \\ &\times \left[ 3 \left[ \sum_b \sum_a \left( 2\Phi\left(\frac{3}{2} 0\right) \right. \right. \right. \\ &+ \Phi\left(\frac{1}{2} 0\right) \left. \right) \left( 2\Psi\left(\frac{3}{2} 0\right) \right. \\ &+ \Psi\left(\frac{1}{2} 0\right) \left. \right) \left. \right] \Theta^{(0)} \\ &+ 2 \left[ \sum_b \sum_a \left( \Phi\left(\frac{3}{2} 1\right) \right. \right. \\ &- \Phi\left(\frac{1}{2} 1\right) \left. \right) \left( \Psi\left(\frac{3}{2} 1\right) \right. \\ &- \Psi\left(\frac{1}{2} 1\right) \left. \right) \left. \right] \Theta^{(1)} \quad (9) \end{aligned}$$

其中

$$\begin{aligned} \Phi(J, K) &= \langle a | r | d \rangle \langle d | r | c \rangle \\ &\times \left( \frac{1}{\Omega_{dJ \rightarrow a} - \omega_R} + \frac{(-1)^K}{\Omega_{dJ \rightarrow a} - \omega_s} \right) \\ \Psi(J, K) &= \langle c | r | b \rangle \langle b | r | a \rangle \\ &\times \left( \frac{1}{\Omega_{bJ \rightarrow a} - \omega_L} + \frac{(-1)^K}{\Omega_{bJ \rightarrow a} + \omega_s} \right) \\ \Theta^{(0)} &= (\boldsymbol{\epsilon}_s \times \boldsymbol{\epsilon}_R)^{(0)} \cdot (\boldsymbol{\epsilon}_L^* \times \boldsymbol{\epsilon}_s)^{(0)} \\ \Theta^{(1)} &= (\boldsymbol{\epsilon}_s \times \boldsymbol{\epsilon}_R)^{(1)} \cdot (\boldsymbol{\epsilon}_L^* \times \boldsymbol{\epsilon}_s)^{(1)} \end{aligned}$$

对 SERS 过程的测量证实, 当泵浦光为线偏振时, 产生的斯托克斯激光的偏振方向基本

上只有两个, 即  $\boldsymbol{\epsilon}_s // \boldsymbol{\epsilon}_0$  和  $\boldsymbol{\epsilon}_s \perp \boldsymbol{\epsilon}_L$ 。考虑到这个因素, 在讨论 RFBM 过程中也只取两个特殊的偏振方向, 即  $\boldsymbol{\epsilon}_R // \boldsymbol{\epsilon}_s // \boldsymbol{\epsilon}_L$ , 和  $\boldsymbol{\epsilon}_R \perp \boldsymbol{\epsilon}_s$ ,  $\boldsymbol{\epsilon}_s \perp \boldsymbol{\epsilon}_L$ 。将(9)式相应的两项分别定名为  $S$  和  $A$ 。取  $5P_{\frac{1}{2}, \frac{3}{2}} \Rightarrow 14P_{\frac{1}{2}, \frac{3}{2}}$  共 20 个  $P$  能级作为对共振有影响的中间能级  $|b\rangle$  与  $|d\rangle$ , 分别计算了 RFBM 过程非线性极化率的  $S$  项和  $A$  项如图 4 所示。在以上所有计算中, 铷原子能级的数值取自[6], 相应跃迁矩阵元的数值取自[7]。

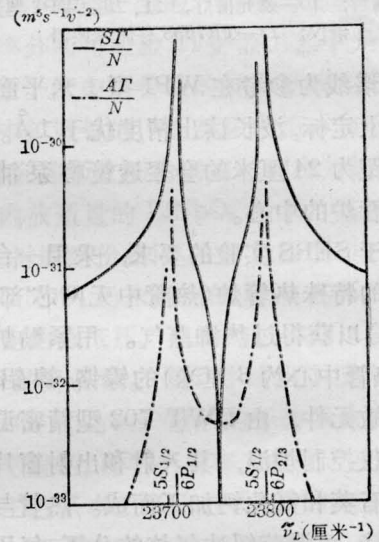


图 4 铷原子 RFBM 过程的非线性极化率

综合以上几项计算及对(3)式的分析, 可以预计  $I_R$  的分布情况为: 随着泵浦光频率从高频端接近两条共振线,  $I_R$  的光强经历一个从弱到强再逐渐消失的过程, 其中  $6P_{\frac{1}{2}}$  高频侧的  $I_{Rmax}$  将比  $6P_{\frac{3}{2}}$  的小很多。

### 三、实验装置

图 5 为实验装置方框图。

氮分子激光器泵浦的染料激光器峰值功率达 8 千瓦, 调谐范围  $4120 \sim 4260 \text{ \AA}$ , 线宽  $\Delta\lambda < 1 \text{ \AA}$ , 脉冲持续时间  $\tau \approx 4$  毫微秒。染料激光器的波长用铷光谱灯的  $4202 \text{ \AA}$  和



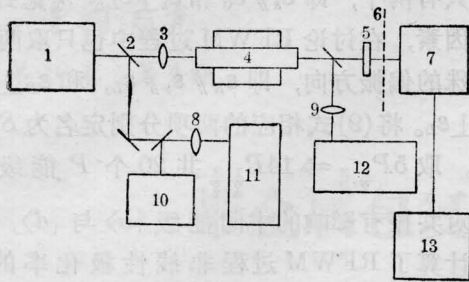


图5 实验装置方框图

1—N<sub>2</sub>激光泵浦的染料激光器；2—分光板；3、8、9—透镜；4—热管炉；5—滤光片；6—感光板；7—GDB-2光电倍增管；10—铷光谱灯，11、12—WP1型光栅摄谱仪；13—TR7633存储示波器

4216 Å 谱线为参考在 WP1 型 1 米平面光栅摄谱仪上定标，波长读出精度优于 1 Å。选用一块焦距为 24 厘米的会聚透镜将泵浦光聚焦至热管炉的中心。

基于 SERS 实验的要求，采用一台分离内网式的特殊热管炉（热管中无网芯部分长 10 厘米）以获得过热铷蒸气。用紧贴炉管外壁（距热管中心约 6 厘米）的镍铬-镍铝热偶作为热敏元件，由 DWT-702 型精密温度自动控制仪控制炉温，其入射和出射窗片分别由熔融石英和氟化钙加工而成。热管与充气系统相接，可调节缓冲气体的分压，气压由一水银压力计测量。

在作讯号强度和光束空间分布测量时，用一块金属膜干涉滤光片滤去其他辐射，滤光片中心波长为 6230 Å，带宽 280 Å，透过率 35%。

#### 四、实验结果

(1) 在 10 托铷蒸气压，13 托氩气分压条件下，用 WP1 型 1 米光栅摄谱仪对 RFWM 过程产生的桔红色激光与泵浦激光同时进行了摄谱测量。每张谱片上的像分别是它们 200~400 次 ( $I_R$ ) 和 10~20 次 ( $I_L$ ) 脉冲的曝光效果，并以铁谱为基准线，见图 6。

通常由 SERS 过程产生的  $\tilde{\nu}_s$  线比泵浦

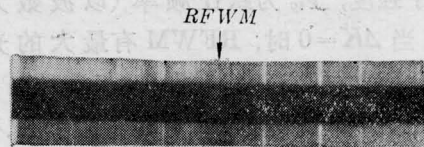


图6 谱片。两列标准铁谱之间的亮线即为 RFWM 信号

线宽，从谱片上看到  $\tilde{\nu}_R$  的线宽大于 1 Å，取其对称中心的频率值为  $\tilde{\nu}_R$ ，我们获得  $\tilde{\nu}_R$  随  $\tilde{\nu}_L$  的变化情况如图 7 所示。

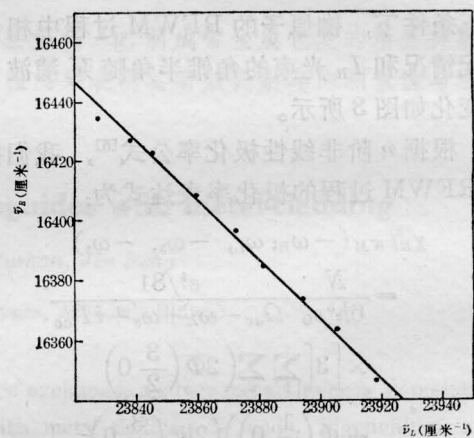


图7  $\tilde{\nu}_R$  随  $\tilde{\nu}_L$  的变化曲线  
实线代表用(10)式计算的结果

其频率在均方差  $\pm 0.35$  厘米<sup>-1</sup> 之内满足下式：

$$\tilde{\nu}_R = \tilde{\nu}_L - 2\tilde{\nu}_s = 2\Omega_{5s+6s} - \tilde{\nu}_L \quad (10)$$

因而证实上述桔红色激光确由 RFWM 过程产生。

(2) 在同样蒸气压和氩分压条件下，拍摄滤光片之后 RFWM 激光的光斑图象（15~30 次脉冲的曝光效果，感光底片距热管中心 42.5 厘米），获得一系列直径随波长增加而增加的圆斑图形，如图 8 所示。

由于在本实验中采用了特殊结构的热管炉，造成铷原子密度沿热管轴向的不均匀分布。从(7)式的计算结果可知，对不同浓度的铷蒸气， $I_R$  的角锥张角不同。因此  $I_R$  的张角分布在一个相当宽的范围内，其横向光斑



图8 RFWM 光束的空间分布特性

因而呈现为一个直径的圆斑，不象理论预计的那样是一个圆环。从图3中可见，原子密度越大， $I_R$ 的张角也越大，所以我们拍摄的圆斑外沿就可以代表热管炉中铷原子蒸气密度最大处(该处的温度决定了整个热管的铷蒸气压)产生的 $I_R$ 的角锥张角。与理论计算相比较(见图9)的结果说明，控温点的温度与上述温度近似相等。

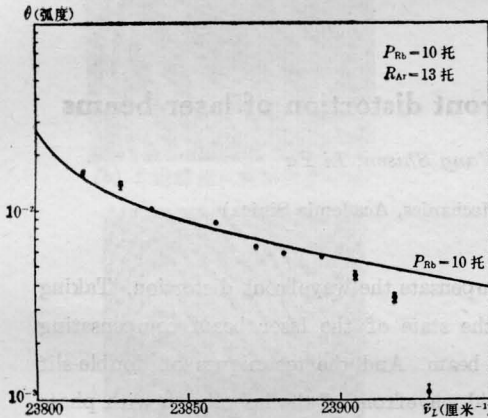


图9 RFWM 光束的角锥半角  
实线代表用(7)式计算的结果

(3) 在不同蒸气压条件下，RFWM 信号强度随泵浦波长变化的测量结果如图10所示。实验中，讯号经滤光片滤光后再经适当衰减，用GDB-52型光电倍增管接收，在Tektronix 7633型存储示波器上显示。图中每点的数值取自15~20个讯号脉冲的算术平均值，垂直短线代表方差。由于位于 $6P_{3/2}$ 高频端的信号比 $6P_{1/2}$ 的大很多，因此增加了100倍衰减，可以看到，测量的结果与理论分析符合得很好。

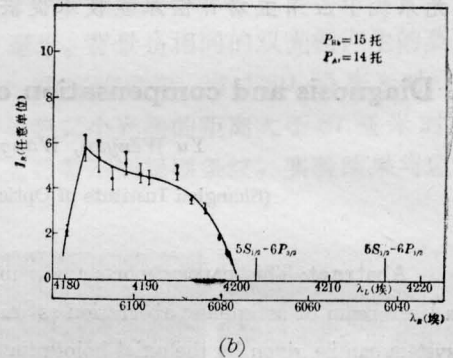
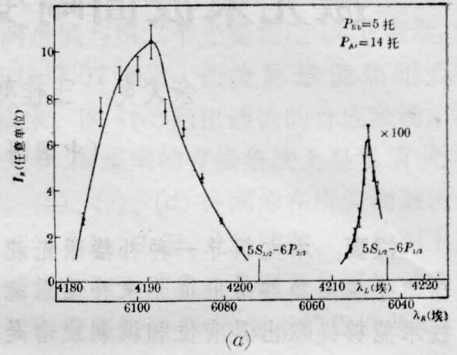


图10 RFWM 信号的光强随泵浦波长的变化曲线

### 参 考 文 献

- [1] 王阿连, 邹英华, 夏宗矩, 郑乐民(待发表).
- [2] Y. R. Shen; "Nonlinear Infrared Generation", Berlin, Springer, 1977, p. 181.
- [3] A. Corney, K. Gardner; *J. Phys.*, 1979, **B12**, 1425.
- [4] D. C. Hanna *et al.*; "Nonlinear Optics of Free Atoms and Molecules", Berlin, Springer, 1979, pp. 15~19.
- [5] M. A. Yuratich, D. C. Hanna; *J. Phys.*, 1976, **B9**, 729.
- [6] C. E. Moore; "Atomic Energy Levels", 1949, pp. 180~183.
- [7] H. Eicher; *IEEE J. Quant. Electr.*, 1975, **QE-11**, 121.