

非共振激发 Na 原子的四光子过程*

赵朔嫣 张培林

(清华大学现代应用物理系)

提要 用 574.42 nm, 574.53 nm 激光入射到 Na 热管炉中, 分别获得 330.22 nm 和 330.30 nm 的相干辐射。实验研究判定此过程是 Na 原子四光子混频过程, 理论和实验符合。

Four-photon process in atomic sodium using two-photon nonresonant excitation

Zhao Shuoyan, Zhang Peilin

(Department of Modern Applied Physics, Qinghua University, Beijing)

Abstract: Coherent radiation at 330.22/330.30 nm is observed respectively as pulsed laser light at 574.42/574.53 nm is focused into a heat pipe oven containing sodium vapor. It is concluded that this process is a four-wave mixing process of atomic sodium. The theoretical wavelength is found to be in agreement with experimental result.

用双光子对 Na 进行共振激发到 $4d^2D_j$ 或 $5s^2S_{1/2}$ 态, 可产生级联受激辐射, 级联受激辐射光子与入射激光可产生四光子混频^[1~4]。本文报道另一种光混频过程——入射激光波长 574 nm, 并不与原子能级的双光子共振激发波长重合, 却仍有强的 330 nm 紫外相干辐射产生。

一、实验装置和实验结果

实验使用 Nd:YAG 激光倍频泵浦的染料激光器, 染料用 R590/R610 混合甲醇溶液, 激光能量 2 mJ/脉冲, 线宽 0.02 nm, 激光束经透镜 ($f=300$ mm) 聚焦于 Na 热管炉 ($l=450$ mm) 中心。产生的紫外相干辐射经

UG-11 型紫外滤光片用 SPEX 0.75 m 型光谱仪分光后, 用光电倍增管接收, 取样积分器检测, 装置如图 1。光波长用 Hg 灯和 Na 灯标定。

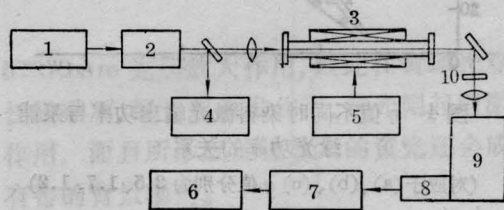


图1 实验装置原理图

- 1—Nd:YAG 激光器(倍频); 2—染料激光器;
3—热管炉; 4—波长计; 5—温度控制器; 6—记录仪; 7—取样积分器; 8—光电倍增管; 9—光谱仪; 10—UV 滤光片

收稿日期: 1987年2月26日。

* 中国科学院科学基金资助的课题。

当热管炉温度为 480°C , Na 原子蒸气密度为 $3.3 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$, 调谐入射激光波长分别为 574.42 nm 和 574.53 nm 时, 沿入射光传播正方向产生一束 330 nm 相干辐射。为弄清其辐射机理, 我们进行了以下实验研究:

(1) 检测 330 nm 相干辐射的激光光谱, 结果如图 2 所示。激发谱线半宽度 $< 0.05 \text{ nm}$, 除 574.42 nm 、 574.53 nm 波长外, 在 $569 \sim 578 \text{ nm}$ 范围内无其它激发波长。只当激发波长接近 579 nm 或 569 nm 时辐射强度才又增加。

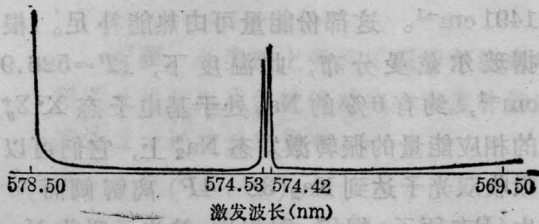


图 2 产生 330 nm 相干辐射的激发谱

(2) 测量相干辐射光谱随激发波长的变化。发现用 574.42 nm 光激发时输出辐射波长为 330.22 nm , 接近于 $4P_{3/2} - 3S_{1/2}$ 原子谱线 330.237 nm ; 而用 574.53 nm 激发, 输出辐射波长为 330.30 nm , 与 $4P_{1/2} - 3S_{1/2}$ 原子谱线 330.299 nm 重合。两种激发波长产生的相干辐射均为单谱线结构, 不具备通常 $4P_J - 3S_{1/2} \left(J = \frac{1}{2}, \frac{3}{2} \right)$ 跃迁所具有的双线结构。调谐激发波长在中心值附近变化 $\pm 0.02 \text{ nm}$, 相干辐射谱线移动只有 $\pm 0.01 \text{ nm}$, 而强度变化极明显, 如图 3 所示。

(3) 测量相干辐射光强随炉温的变化。当炉温由 470°C (相应 Na 原子密度 $N = 2.65 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$) 升高到 490°C ($N = 4.0 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$) 光强增大 15 倍, 变化剧烈; 低于 450°C ($N = 1.71 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$) 无相干辐射输出, 如图 4。

(4) 输出相干辐射光强随入射光强的变化曲线如图 5。相干辐射的增加大于入射光强平方的增加。

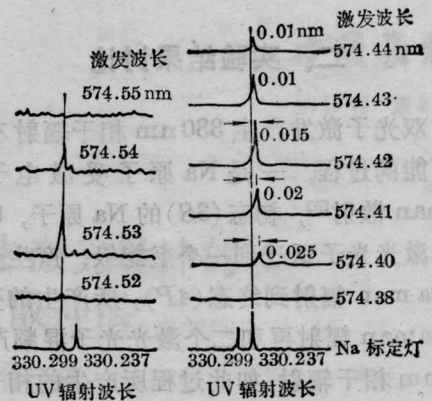


图 3 不同激发波长时的 UV 相干辐射谱

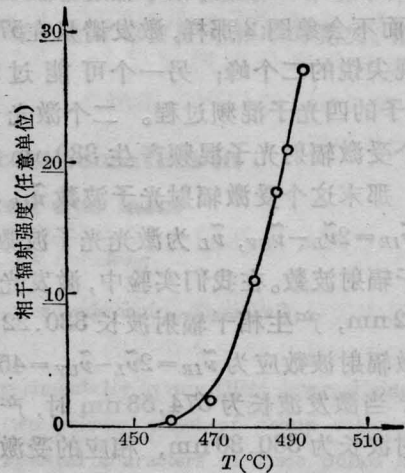


图 4 相干辐射强度随温度的变化

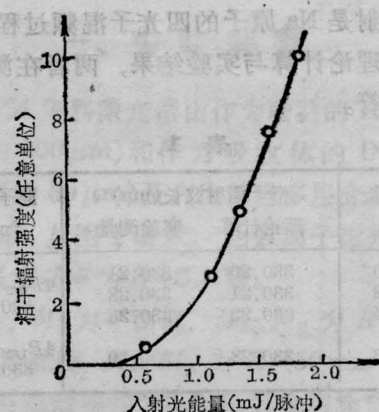


图 5 相干辐射强度随入射光强度的变化

二、实验结果讨论

双光子激发产生 330 nm 相干辐射有两个可能的过程, 一是 Na 原子受激电子超 Raman 散射^[5], 初态(3S)的 Na 原子, 吸收二个激光光子跃迁到一个虚能级, 产生受激超 Raman 辐射到终态(4P), 所产生的受激超 Raman 辐射再和二个激光光子混频产生 330 nm 相干辐射, 如此过程所产生的相干辐射必然在入射激光波长与 4D 能级双光子共振时最强, 亦即当激光波长为 578.7 nm 时最强, 当激光波长失谐时, 相干辐射强度应逐渐减弱, 而不会象图 2 那样, 激发谱只在 574 nm 处出现尖锐的二个峰; 另一个可能过程是 Na 原子的四光子混频过程。二个激光光子与一个受激辐射光子混频产生 330 nm 相干辐射, 那末这个受激辐射光子波数 $\tilde{\nu}_{IR}$ 必须满足 $\tilde{\nu}_{IR} = 2\tilde{\nu}_L - \tilde{\nu}_{UV}$, $\tilde{\nu}_L$ 为激光光子波数, $\tilde{\nu}_{UV}$ 为相干辐射波数。在我们实验中, 激发光波长 574.42 nm, 产生相干辐射波长 330.22 nm, 则受激辐射波数应为 $\tilde{\nu}_{IR} = 2\tilde{\nu}_L - \tilde{\nu}_{UV} = 4532.7 \text{ cm}^{-1}$ 。当激发波长为 574.53 nm 时, 产生相干辐射波长为 330.30 nm, 相应的受激辐射波数为 4532.8 cm^{-1} , 而 $4P_{3/2} - 4S_{1/2}$ 能级之差正好为 4532.7 cm^{-1} , 与上述二个 $\tilde{\nu}_{IR}$ 偏差小于 0.1 cm^{-1} 。因此, 可判定实验所产生的相干辐射是 Na 原子的四光子混频过程。表 1 列出理论计算与实验结果, 两者在测量精度内相符。

表 1

激发波长 (nm)	相干辐射波长 (nm)		原子谱线 (nm)
	理论计算	实验测量	
574.40	330.20	330.21	$4P_{3/2} \sim 3S_{1/2}$ 330.237
574.42	330.21	330.22	
574.44	330.22	330.23	
574.53	330.28	330.30	$4P_{1/2} \sim 3S_{1/2}$ 330.299

以下需要讨论的问题是如何获得 $4P_{3/2}$ 态的布居来产生 $4P_{3/2} - 4S_{1/2}$ 受激辐射。两

个激光光子能量 $2\tilde{\nu}_L$ 比最近的 4D 态能量高 257 cm^{-1} , 如图 6 所示, 所以单从 Na 原子考虑, 4D 态不会有明显的布居, 也就不可能由 4D—4P 受激辐射而构成 4P—4S 的布居反转。4P 态最初布居的可能途径是由钠分子 Na_2 离解而产生, 因为在热管炉内, 除 Na 原子外, 同时存在一定浓度的 Na_2 , 当温度为 485°C 时, Na_2 密度为 $1.3 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$, 由计算可知, 用二个激光光子使基态 Na_2 离解为 Na(3S) 和 Na(4P) 原子尚缺少 $1491 \text{ cm}^{-1[6]}$, $\text{Na}_2(X\Sigma_g^+) + 2\tilde{\nu}_L \rightarrow \text{Na}(3S_{1/2}) + \text{Na}(4P_{3/2}) - 1491 \text{ cm}^{-1}$ 。这部份能量可由热能补足。根据玻尔兹曼分布, 此温度下, $kT = 526.9 \text{ cm}^{-1}$, 约有 6% 的 Na_2 处于基电子态 $X^1\Sigma_g^+$ 的相应能量的振转激发态 Na_2^* 上, 它们可以吸收双光子达到 $\text{Na}_2(3S+4P)$ 离解阈而产生 4P 态原子。据 [7, 8] 报道, 单光子吸收 Na_2 离解产生 3P 态原子主要是 $3P_{3/2}$ 态, 几乎不产生 $3P_{1/2}$ 态, 可设想双光子吸收 Na_2 离解也应有类似现象。一旦形成 $4P_{3/2}$ 的布居, 由于 4S 是空态, 即产生 $4P_{3/2} - 4S_{1/2}$ 的受激辐射 $\tilde{\nu}_{IR}$ 。它一方面与二个入射激光光子混频产生 UV 相干辐射。另一方面被 Na_2 吸收, 形成振转激发态 Na_2^* , 它可再吸收二个激光光子离解产生 4P 原子, 或 Na_2^* 再吸收一个

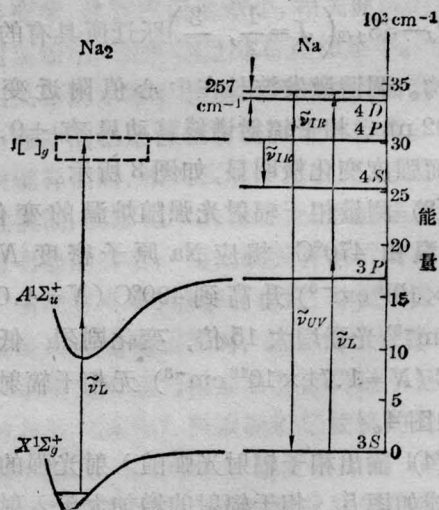


图 6 钠能级图

激光光子离解产生 $3P$ 原子。 $3P$ 原子还可以由 Raman 效应跃迁到 $4P$ 态^[3], 通过这两个通道维持 $4P_{3/2}$ 的布居。

虽然 $4P_{3/2}$ 布居数的产生有分子过程参与, 但本文所观测到的过程, 实质上是钠蒸气中原子的四波混频过程 $\omega_{UV} = 2\omega_L - \omega_{IR}$, 红外光子 $\hbar\omega_{IR}$ 是由 Na 原子 $4P_{3/2} - 4S_{1/2}$ 受激辐射产生, 而混频得到的 $\hbar\omega_{UV}$ 与 Na 原子 $4P_{3/2} - 3S_{1/2}$ 跃迁近共振加强(见公式(2))。上述过程与[9]报道的分子-原子混合共振过程是不同的。区别之一是原子四波混频过程具有窄的激发谱, 而分子-原子混合共振过程则是宽带激发或是多条分子振转谱线激发谱^[9]; 其次原子过程中相干光子的能量符合能量守恒定律, 而分子-原子混合共振过程常需要分子动能的补充, 才能符合守恒定律。

原子四波混频过程的光强可由下式给出^[4]

$$I_{UV} = \epsilon_0^2 \eta_{UV}^2 \eta_{IR}^2 \omega_{UV}^2 |x^{(3)}|^2 I_L^2 I_{IR} / [g_{IR}^2 + 4(\Delta k)^2] \quad (1)$$

式中 $\eta = \sqrt{\mu_0 / \epsilon_0 \epsilon}$; $\Delta k = 2k_L - k_{IR} - k_{UV}$ 为波矢失配量; g_{IR} 为红外受激辐射增益系数。

$$x^{(3)} = K \frac{N}{\hbar^3} \sum_{j,j'} \frac{\langle 3S | \mu | \hat{\psi} \rangle \langle \hat{\psi} | \mu | j \rangle \langle j | \mu | 4P_j \rangle}{\langle 4P_j | \mu | 3S \rangle} \frac{1}{\left\{ \begin{array}{l} (\Omega_i - \omega_L) (\Omega_j - 2\omega_L) \\ \times (\Omega_{4P_j} - \omega_{UV}) \end{array} \right\}} \quad (2)$$

(上接第 454 页)

$$C \geq 4, \text{ 且 } \Delta, \theta \text{ 不同时为 } 0 \quad (27)$$

而平面波 OBS 的双稳条件仅要求 $C \geq 4$, 即便 $\Delta = 0, \theta = 0$, 定态曲线仍然出现明显的多值区(滞后环)。

当然, 两者 S 型曲线的负斜率区, 相应的定态都是失稳的。

上述差异也说明, 如果实现了高斯型的光学双稳, 预期它的定态曲线仍比平面波的双稳曲线更为陡峭(上、下分支交迭更小)。

感谢陈继述教授的热情指导和马先、马

式中的 N 是原子密度; $\Omega_i = (E_i - E_{3s}) / \hbar - i\Gamma_i$ 为复频率。

相干辐射随温度升高而急剧增加可用公式(1)、(2)加以说明。温度升高, 原子密度 N 增多, 使非线性极化率增大; 同时 Na_2 分子密度亦增多, 激发态 Na_2^* 密度随温度按玻尔兹曼分布增多, 由 Na_2^* 吸收双光子离解产生 $4P$ 原子增多, 使受激辐射 I_{IR} 增加。这二项因素结合起来使相干辐射随温度急剧增加。从公式(1)还可以看出, 相干辐射强度除了随入射光强 I_L 平方地增加外, 还与受激辐射增益系数 g_{IR} 和强度 I_{IR} 有关, 而这二项又均与 I_L 有关, 情况比较复杂, 但它的增长显然是大于入射光强平方的增长, 与实验结果一致。

参 考 文 献

- 1 Taylor J R. *Opt. Commun.*, 1976; **18**: 504
- 2 Harting W. *Appl. Phys.*, 1978; **15**: 427
- 3 Chen J K et al. *Appl. Phys., B*, 1984; **33**, 155
- 4 Zhang P L, Schawlow A L. *Canadian J. Phys.* 1984; **62**: 1187
- 5 Cotter D et al. *Opt. Commun.*, 1977; **22**: 190
- 6 Herzberg G. *Molecular Spectra and Molecular Structure I*, 2nd ed. D. Van Nostrand, Princeton, 1950
- 7 Rothe E W et al. *J. Chem. Phys.*, 1980; **72**: 5145
- 8 Gerber G. Moller. *Photodissociation of Na*, in *Laser Spectroscopy VII*, ed. by Hansch T. W., Shen Y. R., Springer-Verlag, Berlin, 1985
- 9 Dinev S G et al. *Appl. Phys. B*, 1986; **39**: 65

则一老同志在数值计算工作中给予的支持和帮助。

参 考 文 献

- 1 Lugiao L A et al. *Opt. Commun.*, 1983; **46**: 57
- 2 Stere Stuu, Murray Sargrnt III. *J. Opt. Soc. Am.*, 1984; **B1**(1): 45
- 3 Lugiao L A et al. *Phys. Rev.*, 1984; **A30**: 1366
- 4 Lugiao L A, Milani M. *J. Opt. Soc. Am.*, 1985; **B2**(1): 18
- 5 哈肯(西德)。协同学, 原子不能出版社, 1984: 255
- 6 Bonifacio R, Lugiao L A. *Lettare Al Nuovo Cimento*, 1978; **15**: 510
- 7 Ligiato L A. *Progress in Optics*, 1984; **XXI**: 69