

# 偏振内调制激励光谱中原子速度变化的碰撞问题

沈维真 王兆永  
(复旦大学物理系)

## 提 要

偏振内调制激励 (POLINEX) 光谱在提高信噪比及使谱线具有洛仑兹型等方面有明显的优点, 它也能克服因原子间速度变化的碰撞而引起的多普勒加宽的本底问题。本文用速率方程的方法对上述问题进行讨论, 取得和实验一致的结论。

## 一、引 言

在高分辨率激光光谱中, 为了消除原子热运动引起的多普勒谱线加宽, 通常让频率相同但传播方向相反的两束激光一起穿过样品, 当窄带的激光频率调谐到多普勒加宽谱线的边上时, 以速度  $v$  运动的一群原子与其中一束激光由于多普勒频移而发生共振, 同时, 以速度  $v$  运动的另一群原子将与另一束反方向传播的激光发生共振, 在多普勒轮廓中出现对称的两个烧孔, 只有轴向速度为 0, 即位于多普勒谱线中心的那些原子, 才能同时与两束激光作用而共振, 倘若在光谱中只汲取能同时与两束激光作用的原子所发出的谱线, 则可以得到无多普勒加宽的光谱, 饱和吸收光谱<sup>[1]</sup>和偏振光谱<sup>[2]</sup>都是这一类非线性激光光谱。

尽管饱和吸收光谱有很高的分辨率, 它对于下能级是亚稳态的原子跃迁, 如 Ne 原子  $1s_5 \rightarrow 2p_2$  的 5882 Å 跃迁, 除了得到无多普勒信号, 还出现多普勒加宽的本底<sup>[3]</sup>, 其原因在于原子寿命长, 原子间的碰撞引起了原子速度的重新分布, 即使激光频率并没有调谐在谱线中心, 被斩波器振幅调制的泵浦光和原子相互作用引起的烧孔, 将影响探测光和原子的相互作用, 使后者也存在一定程度的振幅调制, 进而通过锁定放大器而接收到信号, 于是在调谐过程中形成了上述的多普勒本底, 作为饱和吸收光谱的一种变形, 内调制荧光光谱<sup>[4]</sup>对上述 Ne 原子 5882 Å 谱线的研究, 也存在同样的问题<sup>[5]</sup>。至于偏振光谱, 由于不存在振幅调制, 而且原子间的碰撞, 不仅引起原子速度的变化, 同时也改变原子的取向, 所以不存在因速度变化的碰撞而带来的多普勒本底, 但是, 偏振光谱一方面有较饱和吸收光谱更好的信噪比, 另一方面则存在谱线线型的不对称的问题, 这影响了精确地确定谱线中的位置, 在高分辨率激光光谱中带来困难。

最近, 出现了把偏振光谱和内调制荧光光谱结合起来的“偏振内调制激励光谱”<sup>[6]</sup>, 用它研究 Ne 原子的 5882 Å 跃迁, 不存在速度变化的碰撞所引起的多普勒本底; 同时, 其谱线呈洛仑兹型, 易于确定谱线中心位置。此外, 由于采用荧光方式或光电流方式接收信号, 它也

适用于稀薄的或吸收微弱的介质,在那里,直接测量激光强度的变化是相当困难的。

本文将采用速率方程的方法,在理论上就原子间速度变化的碰撞对 POLINEX 光谱的谱线型问题进行讨论。我们看到,在 POLINEX 光谱中,上述碰撞不会形成多普勒加宽的本底,与实验<sup>[6]</sup>的结果完全一致。

## 二、速率方程方法

在 POLINEX 光谱中,把窄线宽可调谐的连续染料激光分成强度上基本相等的两束光,让它们彼此反向地穿过气体放电管,用两个旋转的偏振调制器调制这两束激光的偏振态,使它们的偏振面分别从  $f_1$  及  $f_2$  的频率旋转,同时保持它们的振幅恒定。当激光波长调谐到 Ne 原子  $1s_5 \rightarrow 2p_2$  跃迁的中心时,我们便可以观察并接收到它的荧光(或光电流)信号,接收器锁定在和频  $f = f_1 + f_2$  上,因而只有同时和两束激光相互作用的原子所发射的荧光信号才能被接收到。

设两束激光的强度分别是  $I_1$  和  $I_2$ , 它们分别沿  $+y$  和  $-y$  方向传播,而它们的电矢量则在  $xOz$  平面内分别以  $f_1$  和  $f_2$  的频率转动,记 Ne 原子  $5882 \text{ \AA}$  跃迁的下能级  $1s_5$  态为  $a(J=2)$ , 上能级  $2p_2$  态为  $b(J'=1)$ , 各量子态的原子数密度作为原子轴向速度  $v$  的函数分别记作  $n_m(v)$  和  $n_{m'}(v)$ 。

对于  $J=2$  的下能级  $a$ , 其粒子数密度  $n_m(v)$  所满足的速率方程可写成

$$\frac{dn_m(v)}{dt} = \lambda_m(v) - \gamma_a n_m(v) - \sum_{m'} [I_1 \sigma_{mm'}^{(1)}(v) + I_2 \sigma_{mm'}^{(2)}(v)] [n_m(v) - n_{m'}(v)] - \sum_{\bar{m}=1}^s n_m(v) \int \Gamma_a(\bar{m}v', mv) dv' + \sum_{\bar{m}=1}^s \int \Gamma_a(mv, \bar{m}v') n_{\bar{m}}(v') dv' \quad (1)$$

上式右端第一项是激励项,设原子速度按麦克斯威分布,考虑到激励对各个磁支能级是均匀的,有

$$\lambda_m(v) = \frac{1}{5} \lambda_a f(v), \quad f(v) = \frac{1}{v\sqrt{\pi}} \exp\left(-\frac{v^2}{\bar{v}^2}\right), \quad (2)$$

其中  $\lambda_a$  是  $1s_5$  态的泵激率,  $\bar{v}$  是原子的平均速度, (1) 式右端第二项是弛豫项,  $\gamma_a$  (以及  $\gamma_b$ ) 是弛豫率。第三项是受激跃迁项,目前存在强度基本上相等的两束光  $I_1$  和  $I_2$ , 单位光强下速度为  $v$  的一个原子与光场作用而在下能级的  $m$  态与上能级的  $m'$  态之间的跃迁几率是  $\sigma_{mm'}^{(i)}(v)$  ( $i=1, 2$ ), 它具有洛仑茨型函数。

$$\sigma_{mm'}^{(i)}(v) = \frac{4\pi}{\hbar^2 c \gamma_{ab}} |\mu_{mm'}^{(i)}|^2 \frac{\gamma_{ab}}{(\omega - \omega_{ab} \pm kv)^2 + \gamma_{ab}^2} = \overline{\sigma_{mm'}^{(i)}} \cdot L(\omega - \omega_{ab} \pm kv), \quad (3)$$

$$L(\omega - \omega_{ab} \pm kv) = \frac{\gamma_{ab}^2}{(\omega - \omega_{ab} \pm kv)^2 + \gamma_{ab}^2} = L_i, \quad (4)$$

$$\gamma_{ab} = (1/\gamma_a + 1/\gamma_b)^{-1} \quad (5)$$

$i=1, 2$ , 其中  $\mu_{mm'}^{(i)}$  是原子与第  $i$  束光相互作用时的偶极跃迁矩阵元,  $\omega_{ab}$  是  $a$ 、 $b$  能级间跃迁的共振频率,  $\omega$  是激光频率,  $k$  是波矢,  $i=1$  时,  $k$  前面取“+”号;  $i=2$  时, 取“-”号,  $L_i$  是洛仑茨函数。

(1) 式右端第四、五项是考虑到粒子间碰撞引起的速度和量子态的交换, 一项是因碰撞

而使粒子数密度减少,另一项则是因碰撞而使粒子数密度增加,式中  $\Gamma_a(\bar{m}v', mv)$  是单位时间内一个原子从  $(mv)$  态经碰撞而成  $(\bar{m}v')$  态的几率,由于碰撞对各磁支能级的分布是均匀的,故有

$$\Gamma_a(\bar{m}v', mv) = \frac{1}{5} \Gamma_a(v', v). \quad (6)$$

对于 Ne-Ne 碰撞,可以采用 Keilson-Stores 型核描写,由于碰撞粒子的质量相等,可近似地认为速度为  $v$  的粒子在碰撞后的速度分布就是麦克斯威分布,与初速度无关<sup>[8]</sup>,

$$\Gamma_a(v', v) = \Gamma_a f(v). \quad (7)$$

于是,描写下能级粒子数密度的速率方程(1)可整理成

$$\begin{aligned} \frac{dn_m(v)}{dt} = & \frac{1}{5} \lambda_a - \gamma_a n_m(v) - \sum_{m'} [I_1 \sigma_{mm'}^{(1)}(v) + I_2 \sigma_{mm'}^{(2)}(v)] [n_m(v) - n_{m'}(v)] \\ & - \Gamma_a n_m(v) + \frac{1}{5} \Gamma_a f(v) \int n_a(v') dv'. \end{aligned} \quad (8)$$

同样,对于上能级粒子数密度的速率方程,有

$$\begin{aligned} \frac{dn_{m'}(v)}{dt} = & \frac{1}{3} \lambda_b - \gamma_b n_{m'}(v) + \sum_u [I_1 \sigma_{mm'}^{(1)}(v) + I_2 \sigma_{mm'}^{(2)}(v)] [n_m(v) - n_{m'}(v)] \\ & - \Gamma_b n_{m'}(v) + \frac{1}{3} \Gamma_b f(v) \int n_b(v') dv'. \end{aligned} \quad (9)$$

注意到

$$n_a(v) = \sum_{m=1}^5 n_m(v), \quad n_b(v) = \sum_{m'=1}^3 n_{m'}(v), \quad (10)$$

由(8), (9)两式,可得

$$\begin{aligned} \frac{dn_a(v)}{dt} = & \lambda_a f(v) - \gamma_a n_a(v) - \sum_{mm'} [I_1 \sigma_{mm'}^{(1)}(v) + I_2 \sigma_{mm'}^{(2)}(v)] [n_m(v) - n_{m'}(v)] \\ & - \Gamma_a n_a(v) + \Gamma_a f(v) \int n_a(v') dv'. \end{aligned} \quad (11)$$

$$\begin{aligned} \frac{dn_b(v)}{dt} = & \lambda_b f(v) - \gamma_b n_b(v) - \sum_{mm'} [I_1 \sigma_{mm'}^{(1)}(v) + I_2 \sigma_{mm'}^{(2)}(v)] [n_m(v) - n_{m'}(v)] \\ & - \Gamma_b n_b(v) + \Gamma_b f(v) \int n_b(v') dv'. \end{aligned} \quad (12)$$

从速率方程(8)、(9)和(11)、(12),可以求出原子和两光束同时作用时的吸收率,为此,先求出稳态情况下的近似解。由(8)式,得

$$\begin{aligned} n_m(v) = & \frac{1}{\gamma_a + \Gamma_a} \left\{ \frac{1}{5} \lambda_a f(v) - \sum_{m'} [I_1 \sigma_{mm'}^{(1)}(v) + I_2 \sigma_{mm'}^{(2)}(v)] \left( \frac{N_a^0}{g_a} - \frac{N_b^0}{g_b} \right) f(v) \right. \\ & \left. + \frac{1}{5} \Gamma_a f(v) \int n_a(v') dv' \right\}, \end{aligned} \quad (13)$$

式中上下能级粒子数密度的差已用无光场作用时的值  $(N_a^0/g_a - N_b^0/g_b) f(v)$  近似地代替,  $g_a$  和  $g_b$  是能级简并度,至于上式积分后得到的如下的方程则可从(11)式中略去速度变化的碰撞而求得其稳态时的值,

$$n_a(v') = \frac{1}{\gamma_a} \left\{ \lambda_a f(v) - \sum_{mm'} [I_1 \sigma_{mm'}^{(1)}(v') + I_2 \sigma_{mm'}^{(2)}(v')] \left( \frac{N_a^0}{g_a} - \frac{N_b^0}{g_b} \right) f(v') \right\}. \quad (14)$$

对于上能级的  $n_{m'}(v)$  和  $n_b(v')$  有类似的表达式。

现在求原子同时和两个光场作用时单位时间、单位体积内的总吸收率  $S$ ,  $S$  正比于观测到的荧光强度或光电流信号强度, 它被定义为

$$S = \int S(v) dv = \int \sum_{mm'} [I_1 \sigma_{mm'}^{(1)}(v) + I_2 \sigma_{mm'}^{(2)}(v)] [n_m(v) - n_{m'}(v)] dv. \quad (15)$$

把(13)、(14)及另两个相应的式子代入上式, 即可求出总吸收率  $S$ , 由于已经计入高阶效应, 因此在总吸收率  $S$  的表达式中将有分别正比于光强平方  $I_1^2$  和  $I_2^2$  的每束光的自饱和吸收率。鉴于我们用锁定放大器锁在和频  $f = f_1 + f_2$  上, 因而接收信号只需考虑正比于  $I_1 I_2$  的互饱和项。此外, 因为两光束的偏振面分别以调制频率  $f_1$  及  $f_2$  转动, 当两束光的偏振面同方向, 例如都在  $z$  方向, 则原子和它们的作用最强; 当偏振面彼此正交, 例如一在  $z$  方向, 另一在  $x$  方向, 则原子和它们的作用最弱。互饱和吸收率在这两种情况下之差, 正比于我们所接收到的信号的振幅, 并且分别用  $\overline{\sigma_{mm'}^z}$  和  $\overline{\sigma_{mm'}^x}$  记作偏振面在  $z$  方向和在  $x$  方向时在共振情况下原子从  $m$  态跃迁到  $m'$  态的几率,

$$\overline{\sigma_{mm'}^z} = \frac{4\pi e^2}{\hbar^2 c \gamma_{ab}} |z_{mm'}|^2, \quad \overline{\sigma_{mm'}^x} = \frac{4\pi e^2}{\hbar^2 c \gamma_{ab}} |x_{mm'}|^2, \quad (16)$$

式中  $e$  是电子电荷, 进而把  $z$  和  $x$  按一阶不可约张量即球面基的分量分解, 应用 Wigner-Eckart 定理

$$\overline{\sigma_{mm'}^z} = \sigma |\langle J \ m \ 1 \ 0 | J' \ m' \rangle|^2 = \sigma_{mm'}^{q_0}, \quad (17)$$

$$\overline{\sigma_{mm'}^x} = \frac{1}{2} \sigma [|\langle J \ m \ 1 \ +1 | J' \ m' \rangle|^2 + |\langle J \ m \ 1 \ -1 | J' \ m' \rangle|^2] = \frac{1}{2} (\sigma_{mm'}^{q_0+1} + \sigma_{mm'}^{q_0-1}),$$

其中

$$\sigma = \frac{4\pi e^2}{\hbar^2 c \gamma_{ab}} \cdot \frac{1}{2J+1} \|T^{(1)}\|^2. \quad (18)$$

于是, 我们得到总吸收率中互饱和部分亦即内调制部分的振幅大小是

$$\begin{aligned} \Delta S = & 2I_1 I_2 \left( \frac{N_a^0}{g_a} - \frac{N_b^0}{g_b} \right) \left\{ \left( \frac{1}{\gamma_a + \Gamma_a} + \frac{1}{\gamma_b + \Gamma_b} \right) \int f(v) L_1 L_2 dv \right. \\ & \times \sum_{mm'} \left[ (\sigma_{mm'}^{q_0})^2 - \frac{1}{2} \sigma_{mm'}^{q_0} (\sigma_{mm'}^{q_0+1} + \sigma_{mm'}^{q_0-1}) \right] + \left( \frac{\Gamma_a}{5\gamma_a(\gamma_a + \Gamma_a)} + \frac{\Gamma_b}{3\gamma_b(\gamma_b + \Gamma_b)} \right) \\ & \left. \times \int f(v) L_1 dv \cdot \int f(v') L_2 dv' \left[ \left( \sum_{mm'} \sigma_{mm'}^{q_0} \right)^2 - \frac{1}{2} \left( \sum_{mm'} \sigma_{mm'}^{q_0} \right) \left( \sum_{mm'} \sigma_{mm'}^{q_0+1} + \sigma_{mm'}^{q_0-1} \right) \right] \right\}. \quad (19) \end{aligned}$$

先考察上式括号中的第二项, 注意到

$$\sum_{mm'} \sigma_{mm'}^{q_0} = \sum_{mm'} \sigma_{mm'}^{q_0+1} = \sum_{mm'} \sigma_{mm'}^{q_0-1}, \quad (20)$$

即求和与偏振方向无关, 因此这第二项为 0。(19)式括号中的第一项, 利用(17)式中的 Clebsch-Gordon 系数, 并代入  $J=2$  和  $J'=1$  的值, 可算出累加部分为 21/100; 同时, 在多普勒宽度  $\Delta\omega_D \gg \gamma_{ab}$  的情况下, 麦克斯威分布函数  $f(v)$  可以从积分号下提出, 余下两个洛伦茨函数乘积的积分依然是洛伦茨函数, 最后经整理得

$$\Delta S = \frac{21}{100} \frac{\sqrt{\pi} I_1 I_2 \gamma_{ab}}{\Delta\omega_D} \cdot \sigma^2 \left( \frac{N_a^0}{g_a} - \frac{N_b^0}{g_b} \right) \left( \frac{1}{\gamma_a + \Gamma_a} + \frac{1}{\gamma_b + \Gamma_b} \right) \frac{\gamma_{ab}^2}{(\omega + \omega_{ab})^2 + \gamma_b^2}. \quad (21)$$

这表明在 Polinex 光谱中, 所取出的内调制信号具有洛伦茨线型, 而不存在多普勒加宽的本

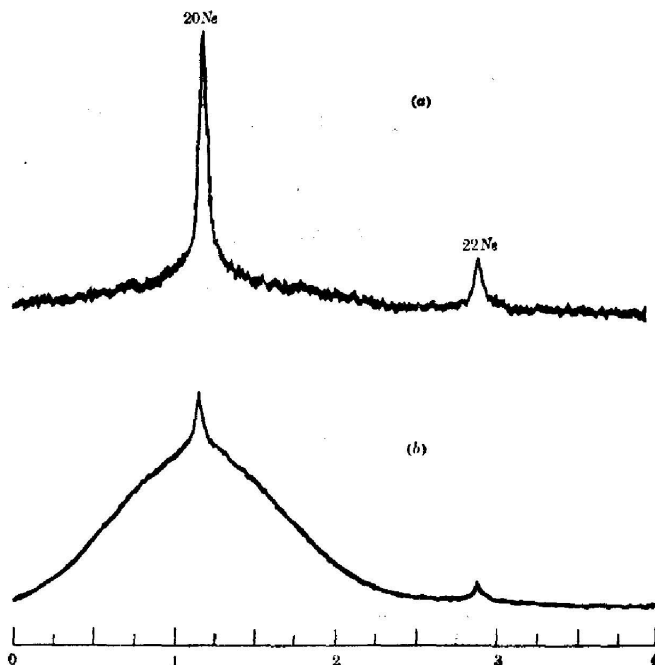
底。此结论与图 1 所示的实验<sup>[6]</sup>完全一致,这是 Ne 原子 5882 Å 跃迁的同位素位移(<sup>20</sup>Ne 和 <sup>22</sup>Ne),图中(a)是 POLINEX 光谱,(b)是内调制荧光光谱,从图中可以看到多普勒加宽的本底已被消除。

图 1

(a) Ne 原子  $1s_g-2p_2$  跃迁的无多普勒 POLINEX 光谱,它显示了 <sup>22</sup>Ne 和 <sup>20</sup>Ne 的同位素位移;  
(b) 用内调制荧光光谱所得到的同一谱线,其中的多普勒加宽的本底来自速度变化的碰撞(见文献[6])

Fig. 1

(a) Doppler-free POLINEX spectrum of the  $1s_g-2p_2$  transition of Ne atom. It shows the isotope shift of <sup>22</sup>Ne and <sup>20</sup>Ne;  
(b) Same spectrum recorded by the intermodulated fluorescence method. The Doppler-broadened is caused by velocity-changing collisions<sup>[6]</sup>



### 三、结 论

由于偏振内调制激励光谱揉合了偏振光谱和内调制光谱的特点,因而显示了一定的优点。与偏振光谱相同,由于不存在激光的振幅调制,在选取偏振内调制信号的过程中,可以避免因原子间速度变化的碰撞而引起的多普勒本底。事实上,在(19)式括号内的第二项中,两个积分的乘积是高斯函数,正因为对角动量累加时此积分前的系数为 0,才使得这种高斯型的本底不存在;而在饱和光谱及内调制光谱中,则存在这一项<sup>[3,5]</sup>,构成无多普勒信号下的多普勒本底,其次,由于现在接收的是荧光或光电流信号,它来自于上能级的粒子数集居,即来源于总吸收率,与介质的色散无关,从而避免了单纯的偏振光谱中谱线不对称的问题。我们用速率方程方法对上述问题作理论分析,得到和实验一致的结论。也可以用密度矩阵方法对此加以讨论,其结果是相同的。

作者感谢与严光耀同志所进行的有益的讨论。

### 参 考 文 献

- [1] T. W. Hänsch, M. D. Levenson *et al.*; *Phys. Rev. Lett.*, 1971, **26**, No. 16 (19 Apr), 946.  
M. C. Borde; *C. R. Acad. Sc. (Ser. A & B)*, 1970, **271**, No. 6 (10 Aug), 371.
- [2] C. Wieman, T. W. Hänsch; *Phys. Rev. Lett.*, 1976, **36**, No. 20 (19 May), 1170.
- [3] S. N. Jabr, W. R. Bennett, Jr.; *Phys. Rev. (A)*, 1980, **21**, No. 5 (May), 1518.
- [4] M. S. Sorem, A. L. Schawlow; *Opt. Commun.*, 1972, **5**, No. 3 (Jun), 148.

- [ 5 ] Wang Zhao-yong, Yan Guang-yao *et al.*; *B. A. P. S.*, 1980, **25**, No. 9 (Nov), 1128.  
[ 6 ] T. W. Hänsch, D. R. Lyons *et al.*; *Opt. Commun.*, 1981, **37**, No. 2 (15 Apr), 87.

## Atomic velocity-changing collisions in polarization intermodulated excitation spectroscopy

SHEN WEIDIAN AND WANG ZHAOYONG

(*Department of Physics, Fudan University, Shanghai*)

(Received 4 June 1981)

### Abstract

Polarization intermodulated excitation (POLINEX) spectroscopy is a new developing Doppler-free spectroscopic technique which combines the advantages of the polarization spectroscopy and the intermodulated fluorescence spectroscopy. In this technique, a tunable laser beam is circular polarized first and then divided into two parts of nearly same intensities. Two rotating polarizers of different modulated frequencies are used to change the directions of these linear polarized beams periodically with time. When they interact with the atoms, the fluorescence signal are detected via a lock-in amplifier. The POLINEX spectroscopy can effectively eliminate the Doppler-broadened pedestal due to the velocity-changing collisions among atoms as the polarization-modulation is used instead of the amplitude modulation. And that pedestal is a problem in the original saturated spectroscopy and the intermodulated fluorescence spectroscopy. Meanwhile, there is no asymmetry of the line-shape in the polarization spectroscopy, because only the fluorescent or opto-galvanic signal are detected in this new method. In this paper a study of velocity-changing collisions in POLINEX spectroscopy using the rate equation approach is presented. A kernel function is introduced to describe the probability of atom moving out or in the state  $\nu$  (velocity) and  $m$  (magnetic quantum number) and the related terms additional to the rate equations. We calculate the total absorption rate and pick out the term concerning the mutual absorption (intermodulated signal). The amplitude of signal is proportional to the difference of the absorption rate when the senses of polarization of two counter-propagating laser beams are same or perpendicular to each other. We obtain the results which show the term related with the Doppler-broadened pedestal being cancelled after the operation of Clebsch-Gordon coefficients. These results coincide with the experiments performed before. Using the density matrix approach we can obtain the same results.