

偏振内调制激励光谱中原子速度变化的碰撞问题(II)

沈维滇 王兆永
(复旦大学物理系)

提 要

在前文“偏振内调制激励 (POLINEX) 光谱中原子速度变化的碰撞”中^[5], 应用速率方程分析了 POLINEX 光谱消除碰撞引起的多普勒本底, 使谱线呈洛仑兹线型的机理。在本文中我们进一步用拉姆的半经典理论来分析光谱的这种机理, 得到了更普遍、更深刻的结果。

一、引 言

偏振内调制激励 (POLINEX) 光谱^[1, 2]作为一种新的无多普勒高分辨率光谱, 既能消除饱和光谱和内调制荧光光谱中因原子之间速度变化的碰撞所引起的多普勒本底^[3], 又能避免偏振光谱中所存在的谱线中心移动和线型不对称的问题^[4], 具有很高的灵敏度和分辨率, 引起了广泛的兴趣。

在 POLINEX 光谱中, 两束频率相同的激光束相同地穿过气体放电管, 激光束的偏振面分别以频率 f_1 和 f_2 绕着它们的传播方向旋转。在调制激光束偏振态的同时, 保持激光束的强度不变, 然后通过锁定放大器, 接收荧光或光电流信号中按频率 $2|f_1 \pm f_2|$ 调制的内调制信号。

在上文^[5]中, 我们曾用速率方程方法, 从理论上对 POLINEX 光谱所具有的上述这些特点作了讨论。为了对 POLINEX 光谱作更深入的分析, 我们进一步应用 Lamb^[6]的半经典理论。从密度矩阵的运动方程着手, 求出原子体系在光场 I_1 和 I_2 作用下的三阶极化率 $\chi^{(3)}$, 再由 $\chi^{(3)}$ 计算吸收系数 α 中的非线性部分, 从而得到 POLINEX 光谱中内调制信号的强度和线型。

Hänsch 和 Toschek 在研究气体激光放大器的理论时, 曾经在考虑能级简并和光的偏振性的情况下, 计算了泵浦束和探测束具有不同频率时的 $\chi^{(3)}$ ^[7], 但是在他们的理论中没有考虑使原子速度和取向发生变化的原子之间的碰撞。Berman 在研究碰撞方面做了很多工作, 他在建立激光器中碰撞对谱线线型影响的理论时^[8, 9], 指出在原子体系与光场相互作用的情况下, 用经典方式描写原子的质心运动是不正确的。以一个二能级的原子为例, 设原子 A 受到一个静止微扰体 p 的散射, 如图 1 所示, 如果原子处于纯 a 态, 它将沿轨道 a 运动; 如果原子处于纯 b 态, 它将沿轨道 b 运动。当原子与光场相互作用时, 原子有了一定的偶极

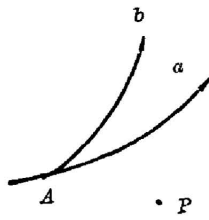


图1 原子的散射
Fig.1 Atomic scattering

矩, 即 $\rho_{ab}(\mathbf{R}, t) \neq 0$, 在发生碰撞时原子处于 a 态与 b 态的线性组合的迭加态, 在这种情况下无法确定原子的轨道。所以必须放弃把原子看作具有确定速度的一个整体的这种经典观点, 发展 Lamb 理论, 并用量子力学的方式处理原子的质心运动。在这一观点指引下, Berman 导出了量子力学的输运方程(QMTE)^[10], 并用它研究了碰撞对原子和分子光谱线型的影响^[11]。推导 QMTE 过程中所用的基本假设和近似条件在通常的光谱实验中都能得到满足, 欠缺的是, 在 Berman 的工作中所用的原子模型都是简单的二能级体系, 没有考虑能级的简并, 另外也没有考虑光的偏振性。

为了用半经典理论分析 POLINEX 光谱, 在本文中, 我们综合了 Hänsch 和 Berman 的工作, 使之统一处理能级的简并, 光的偏振性和碰撞交叉弛豫。

二、用半经典理论分析 POLINEX 光谱实验

以 Ne 的 $1s_5 \sim 2p_2$ 5882 Å 跃迁为例。如图 2 所示, 我们把 Ne 原子 5882 Å 跃迁的下能级 $1s_5$ 记作 $a(J=2, m=-2, -1, 0, +1, +2)$, 分别记作 a_1, a_2, a_3, a_4, a_5 , 上能级 $2p_2$ 记作 $b(J'=1, m'=-1, 0, +1)$, 分别记作 b_1, b_2, b_3 。Ne 原子用密度矩阵 $\rho(\mathbf{R}, \mathbf{v}, t)$ 描写。

$$\rho(\mathbf{R}, \mathbf{v}, t) = \begin{pmatrix} \rho_{bb} & \rho_{ba} \\ \rho_{ab} & \rho_{aa} \end{pmatrix}, \quad (1)$$

$\rho_{bb}, \rho_{ba}, \rho_{ab}, \rho_{aa}$ 相对于磁支能级来说, 分别是 $3 \times 3, 3 \times 5, 5 \times 3, 5 \times 5$ 的矩阵, $\rho^+ = \rho$ 。

两束激光频率相同, 强度相等, 相向穿过气体介质, 场 \mathbf{E} 的表示式是

$$\begin{aligned} \mathbf{E} = \mathbf{E}_1 + \mathbf{E}_2 = & \tilde{E}_1 \exp[-i(\omega t - kz)] \\ & + \tilde{E}_2 \exp[-i(\omega t + kz)] + c.c. \end{aligned} \quad (2)$$

在冲击近似和二元碰撞近似的条件下, 依照 Berman 和 Lamb^[12], 密度矩阵 ρ 的时间变化率可用下式给出,

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = \left. \frac{\partial \rho}{\partial t} \right|_{\text{无碰撞}} + \left. \frac{\partial \rho}{\partial t} \right|_{\text{碰撞}}, \quad (3)$$

方程 (3) 右端第一项表示无碰撞情况下的时间变化率, 第二项表示碰撞引起的 ρ 的时间率。先考虑无碰撞情况。无碰撞情况下 $\rho(\mathbf{R}, \mathbf{v}, t)$ 的运动方程是

$$\left(\frac{\partial}{\partial t} + \mathbf{v} \cdot \nabla \right) \rho = \lambda(\mathbf{v}) - \frac{1}{2} (\Gamma \rho + \rho \Gamma) - \frac{i}{\hbar} (\mathcal{H} \rho - \rho \mathcal{H}), \quad (4)$$

方程 (4) 右端第一项是激励项, 激励矩阵为

$$\lambda(\mathbf{v}) = \begin{pmatrix} \lambda_b(\mathbf{v}) \cdot (\mathbf{I}) & 0 \\ 0 & \lambda_a(\mathbf{v}) \cdot (\mathbf{I}) \end{pmatrix}, \quad (5)$$

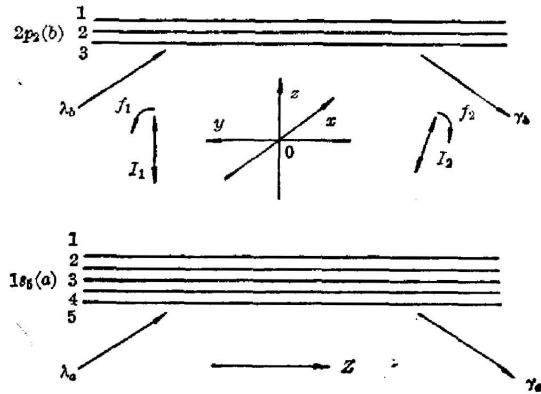


图2 Ne $1s_5 \sim 2p_2$, 5882 Å 跃迁
Fig. 2 The Ne $1s_5 \sim 2p_2$, 5882 Å transition

式中 (\mathbf{I}) 表示单位矩阵。设激励是宽带的, $\lambda(\mathbf{v})$ 的分布为热平衡分布。在无外场作用时

$$\rho_{\alpha\alpha}^0(\mathbf{v}) = \lambda_{\alpha}(\mathbf{v}) / \gamma_{\alpha} \quad (\alpha = a \text{ 或 } b), \quad (6)$$

$\rho_{\alpha\alpha}^0(\mathbf{v})$ 是无外场作用下, 稳态时的粒子数矩阵元, 所以 $\lambda(\mathbf{v})$ 可以用 $\rho_{\alpha\alpha}^0(\mathbf{v})$ 和 γ_{α} 表示。

第二项是衰减项, 衰减矩阵为

$$\Gamma = \begin{pmatrix} \gamma_b \cdot (\mathbf{I}) & 0 \\ 0 & \gamma_a \cdot (\mathbf{I}) \end{pmatrix}. \quad (7)$$

第三项是受激辐射项, \mathcal{H} 是体系的 Hamiltonian 量, 在偶极近似下, $\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 - \boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E}$, 用矩阵表示

$$\mathcal{H} = \begin{pmatrix} E_b \cdot (\mathbf{I}) & -\mathbf{E} \cdot \boldsymbol{\mu}_{ba} \\ -\mathbf{E} \cdot \boldsymbol{\mu}_{ab} & E_a \cdot (\mathbf{I}) \end{pmatrix}. \quad (8)$$

为了便于求解, 分解方程(4), 对各个密度矩阵元有

$$\left(\frac{\partial}{\partial t} + \mathbf{v} \cdot \nabla \right) \rho_{bb} = \frac{i}{\hbar} \mathbf{E} \cdot (\boldsymbol{\mu}_{ba} \cdot \rho_{ab} - \rho_{ba} \cdot \boldsymbol{\mu}_{ba}) + (\rho_{bb}^0 - \rho_{bb}) \gamma_b, \quad (9)$$

$$\left(\frac{\partial}{\partial t} + \mathbf{v} \cdot \nabla \right) \rho_{aa} = \frac{i}{\hbar} \mathbf{E} \cdot (\boldsymbol{\mu}_{ab} \cdot \rho_{ba} - \rho_{ab} \cdot \boldsymbol{\mu}_{ba}) + (\rho_{aa}^0 - \rho_{aa}) \gamma_a, \quad (10)$$

$$\left(\frac{\partial}{\partial t} + \mathbf{v} \cdot \nabla \right) \rho_{ba} = \frac{i}{\hbar} [(E_a - E_b) \rho_{ba} + \mathbf{E} \cdot (\boldsymbol{\mu}_{ba} \cdot \rho_{aa} - \rho_{bb} \cdot \boldsymbol{\mu}_{ba})] - \rho_{ba} \gamma_{ba}, \quad (11)$$

方程(11)中 $\gamma_{ba} = (\gamma_b + \gamma_a) / 2$ 。

我们再来考虑碰撞效应, 对于对角的密度矩阵元有

$$\left. \frac{\partial}{\partial t} \rho_{\alpha\alpha}(\mathbf{v}, t) \right|_{\text{碰撞}} = -\Gamma_{\alpha\alpha}^{vc}(\mathbf{v}) \cdot \rho_{\alpha\alpha}(\mathbf{v}, t) + \frac{1}{g_{\alpha}} \int W_{\alpha\alpha}(\mathbf{v}' \rightarrow \mathbf{v}) \cdot \text{Trace} \rho_{\alpha\alpha}(\mathbf{v}', t) \cdot d^3v' \quad (\alpha = a \text{ 或 } b), \quad (12)$$

$g_{\alpha} = 2J_{\alpha} + 1$ 是简并因子。方程(12)右端的第一项表示由于碰撞而引起的 $\rho_{\alpha\alpha}(\mathbf{v}, t)$ 的减少, $\Gamma_{\alpha\alpha}^{vc}(\mathbf{v})$ 是实数, 是速度为 \mathbf{v} 的 α 态原子遭受使速度变化的碰撞的速率。右端第二项表示由于碰撞而引起的 $\rho_{\alpha\alpha}(\mathbf{v}, t)$ 的增加, $W_{\alpha\alpha}(\mathbf{v}' \rightarrow \mathbf{v})$ 是实数, 是 α 态原子通过碰撞, 速度由 \mathbf{v}' 变为 \mathbf{v} 的几率密度, 考虑到通过碰撞后, 原子在各个磁支能级上的分布是均匀的, 故引入因子 g_{α} 。

在无外场作用的情况下, 如果激励是热平衡分布的, 则 $\left. \frac{\partial \rho_{\alpha\alpha}}{\partial t} \right|_{\text{碰撞}} = 0$, 即碰撞不会改变它的平衡态分布。

对于非对角的密度矩阵元有

$$\left. \frac{\partial \rho_{ba}(\mathbf{v}, t)}{\partial t} \right|_{\text{碰撞}} = -\gamma_{ba}^{ph}(\mathbf{v}) \cdot \rho_{ba}(\mathbf{v}, t) - \Gamma_{ba}^{vc}(\mathbf{v}) \cdot \rho_{ba}(\mathbf{v}, t) + \int W_{ba}(\mathbf{v}' \rightarrow \mathbf{v}) \cdot \rho_{ba}(\mathbf{v}', t) d^3v', \quad (13)$$

方程(13)中量子力学的线型参数 $\gamma_{ba}^{ph}(\mathbf{v})$ 反映了相移碰撞, 即在 a 态和 b 态的几率振幅上引起了一个相对的相移, 而不引起速度变化的碰撞, 它将导致谱线的移动和加宽, 对应着传统的压力加宽理论中的 PIC (Phase Interruption Collision) 线型参数。碰撞参数 $\Gamma_{ba}^{vc}(\mathbf{v})$ 和 $W_{ba}(\mathbf{v}' \rightarrow \mathbf{v})$ 是复数, 缺乏简单的物理解释, 不严格地说, 它们与同时产生速度变化和相移的碰撞有着联系。

由方程(12), (13)可以看到, 速度是与某一个密度矩阵元相联系的, 而不是与作为一个

整体的原子相联系,这是用量子力学方法处理与态有关的碰撞相互作用的必然结果。由于不同的态有着不同的碰撞相互作用,所以与不同的密度矩阵元相联系的速度变化是不同的,不可能把经受碰撞后的一个原子作为一个整体,指定一个速度。

Berman 用量子力学方法对于(12)和(13)式中的碰撞参数 $\gamma_{ba}^h(\mathbf{v})$, $W_{aa'}(\mathbf{v}' \rightarrow \mathbf{v})$ 和 $\Gamma_{aa'}^{vc}(\mathbf{v})$ 作了计算^[10,13]。

由于 Ne 的 $1s_5 - 2p_2$ 跃迁是两个电子能级之间的跃迁,各个电子能级的轨道半径和极化率不同,所以 $1s_5$ 和 $2p_2$ 态经受的碰撞相互作用相差很大,即散射振幅 f_a 和 f_b 相差很大,在这种情况下, $|\gamma_{ba}^h(\mathbf{v})| \gg |\Gamma_{ba}^{vc}(\mathbf{v})|$, 所以可以忽略方程(13)中右端的第二、第三项,这意味着在 a 态和 b 态的碰撞相互作用相差很大的情况下,对于非对角元 ρ_{ba} 只需考虑相移碰撞。速度变化-相移的碰撞不予考虑的理由是,在碰撞后 ρ_{ba} 近似地由一个平面波(相应于碰撞相互作用弱的态)和一个球面散射波(相应于碰撞相互作用强的态)在空间交迭所组成,这样的交迭在除了前向外的各个方向上都有一个迅变的位相因子,因此 ρ_{ba} 在除了前向外的各个方向上实际为 0, 所以只要考虑相移碰撞,而不需要考虑速度变化的碰撞。

在考虑了碰撞后,方程(9), (10), (11)写为

$$\left(\frac{\partial}{\partial t} + v \frac{\partial}{\partial z}\right) \rho_{bb}(z, v, t) = \frac{i}{\hbar} \mathbf{E} \cdot (\boldsymbol{\mu}_{ba} \cdot \rho_{ab} - \rho_{ba} \cdot \boldsymbol{\mu}_{ab}) + (\rho_{bb}^0 - \rho_{bb}) \gamma_b - \rho_{bb} \Gamma_b^{vc}(v) + \frac{1}{g_b} \int W_{bb}(v' \rightarrow v) \text{Trace } \rho_{bb}(v') \cdot d\mathbf{v}' \cdot (\mathbf{I}), \quad (14)$$

$$\left(\frac{\partial}{\partial t} + v \frac{\partial}{\partial z}\right) \rho_{aa}(z, v, t) = \frac{i}{\hbar} \mathbf{E} \cdot (\boldsymbol{\mu}_{ab} \cdot \rho_{ba} - \rho_{ab} \cdot \boldsymbol{\mu}_{ba}) + (\rho_{aa}^0 - \rho_{aa}) \gamma_a - \rho_{aa} \Gamma_a^{vc}(v) + \frac{1}{g_a} \int W_{aa}(v' \rightarrow v) \text{Trace } \rho_{aa}(v') d\mathbf{v}' \cdot (\mathbf{I}), \quad (15)$$

$$\left(\frac{\partial}{\partial t} + v \frac{\partial}{\partial z}\right) \rho_{ba}(z, v, t) = \frac{i}{\hbar} [(E_a - E_b) \rho_{ba} + \mathbf{E} \cdot (\boldsymbol{\mu}_{ba} \cdot \rho_{aa} - \rho_{bb} \cdot \boldsymbol{\mu}_{ba})] - \rho_{ba} \gamma_{ba} - \rho_{ba} \gamma_{ba}^h(v), \quad (16)$$

我们关心的只是 z 轴方向上的情况,此处已将 \mathbf{R} 改为 z , $v = v_z$ 。

下面考察在第二束光 I_2 存在情况下,第一束光 I_1 所感生的极化强度,

$$P_{1i} = \text{Trace}(\rho \mu_i) \approx \chi_{ij}^{(1)} E_{1j} + \chi_{ijkl}^{(2)} \cdot E_{1j} \cdot E_{2k}^* \cdot E_{2l} + \dots, \quad (17)$$

要注意到 $\text{Trace}(\rho \mu_i)$ 中有 $\exp[-i(\omega t - kz)]$ 因子的才对 P_{1i} 有贡献,方程(17)右端第一项是 \mathbf{E}_1 的线性项,第二项是由于 \mathbf{E}_2 的互饱和产生的三阶项,完整的表示式还应包括 \mathbf{E}_1 的自饱和三阶项……以及其它更高阶项。对 I_1 的线性吸收系数

$$\alpha_1^{(1)} = \frac{4\pi\omega}{c} I_m \chi^{(1)}, \quad (18)$$

由于 I_2 的存在,通过互饱和对 I_1 的吸收系数产生的变化为

$$\alpha_1^{(3)} = \frac{4\pi\omega}{c} I_m \chi^{(3)} |E_2|^2. \quad (19)$$

用微扰理论解方程(14), (15), (16), 用 \mathbf{E}_1 , \mathbf{E}_2 的双重幂级数展开密度矩阵,分别求解各个 $\rho_{aa'}^{ij}$, i 表示 \mathbf{E}_1 的幂次, j 表示 \mathbf{E}_2 的幂次。

方程的零级解是,

$$\rho_{aa}^{00}(v) = \left(\frac{N_a^0(v)}{g_a} \right) \cdot (I), \quad \rho_{bb}^{00}(v) = \left(\frac{N_b^0(v)}{g_b} \right) \cdot (I), \quad \rho_{ba}^{00}(v) = 0, \quad (20)$$

$N_a^0(v)$ 表示无光场情况下, 热平衡时速度为 v 处于 a 能级的粒子数密度 ($\alpha = a$ 或 b)。

作一级近似求解 ρ_{ba}^{01} , 由方程(16)得

$$\left[\frac{\partial}{\partial t} + v \frac{\partial}{\partial z} + i\omega_{ab} + \gamma_{ba} + \gamma_{ba}^{ph}(v) \right] \rho_{ba}^{01} = \frac{i}{\hbar} (\mathbf{E}_2 \cdot \boldsymbol{\mu}_{ba} \cdot \rho_{aa}^{00} - \rho_{bb}^{00} \cdot \boldsymbol{\mu}_{ba} \cdot \mathbf{E}_2). \quad (21)$$

当激活原子速度 v 比微扰体速度 v_p 大得多时, 即对于轻的激活原子和重的微扰体情况下, $\gamma_{ba}^{ph}(v)$, $\Gamma_{aa'}^{vc}(v)$ 对 v 的依赖关系才是重要的。对于 Ne-Ne 碰撞, 按一级近似求解时, 忽略 $\gamma_{ba}^{ph}(v)$ 和 $\Gamma_{aa'}^{vc}(v)$ 对 v 的依赖关系,

$$\gamma_{ba}^{ph}(v) \approx \gamma_{ba}^{ph} = \Gamma_{ba}^{ph} + i\Delta_{ba}^{ph}, \quad \Gamma_{aa'}^{vc}(v) \approx \Gamma_{aa'}^{vc}. \quad (22)$$

并设 $\rho_{ba}^{01} = \tilde{\rho}_{ba}^{01} \cdot \exp[-i(\omega t - kz)]$, 代入方程(21), 利用方程(22), 作转动波近似, 忽略迅速振荡项, 得到稳态解

$$\tilde{\rho}_{ba}^{01} = \frac{1}{\hbar} \frac{1}{(\Delta_{ba} - kv)} \left(\frac{N_a^0(v)}{g_a} - \frac{N_b^0(v)}{g_b} \right) \cdot \boldsymbol{\mu}_{ba} \cdot \tilde{\mathbf{E}}_2, \quad (23)$$

式中 $\Delta_{ba} = (\omega_{ba} + \Delta_{ba}^{ph} - \omega) - i(\gamma_{ba} + \Gamma_{ba}^{ph})$ 。按同样方法可求得 ρ_{ba}^{10} 对角元的一级近似值都为 0。

然后作二级近似, 由方程(14), (15), (16), 并利用 ρ_{ba} 的一级近似值, 可以得到 $\rho_{ba}^{02}(v)$, $\rho_{aa}^{02}(v)$, $\rho_{bb}^{11}(v)$, $\rho_{aa}^{11}(v)$, 非对角元的二级近似值为 0。

最后作三级近似, 考虑到 $N^0(v) = N^0(\pi\bar{v}^2)^{-1/2} \exp(-v^2/\bar{v}^2)$, 即速度分布为 Gaussian 型, 以及 $k\bar{v} \gg \gamma$ 的情况, 求出 $\rho_{ba}^{12}(v)$; 利用 $\rho_{ba}^{12} = \int \rho_{ba}^{12}(v) dv$, 求出 ρ_{ba}^{12} ; 再结合方程(17) 求出 $\chi_{ijkl}^{(3)}$; 把 $\chi_{ijkl}^{(3)}$ 代入方程(19), 得到 $\alpha_i^{(3)}$,

$$\begin{aligned} \alpha_i^{(3)} = & \frac{-4\pi^{3/2}}{\hbar^3 \bar{v}} \left(\frac{N_a^0}{g_a} - \frac{N_b^0}{g_b} \right) \left[\frac{1}{\gamma_a + \Gamma_a^{vc}} A_{abb}^{ijk} + \frac{1}{\gamma_b + \Gamma_b^{vc}} A_{baa}^{ijk} \right] \frac{(\gamma_{ba} + \Gamma_{ba}^{ph})}{(\omega_{ab} + \Delta_{ba}^{ph} - \omega)^2 + (\gamma_{ba} + \Gamma_{ba}^{ph})^2} \\ & \cdot |E_2|^2 + \frac{4\pi\omega}{\hbar^3 \gamma_a c g_a} |E_2|^2 I_m \left\{ \int \frac{i dv}{(\Delta_{ba} + kv)} \cdot \int W_a(v' \rightarrow v) \left(\frac{N_a^0(v')}{g_a} - \frac{N_b^0(v')}{g_b} \right) \right. \\ & \cdot \left. \left(\frac{1}{\Delta_{ba} - kv'} - \frac{1}{\Delta_{ba}^* - kv'} \right) dv' \right\} \text{Trace}(\boldsymbol{\mu}_{ba}^i \cdot \boldsymbol{\mu}_{ab}^k) \cdot \text{Trace}(\boldsymbol{\mu}_{ba}^j \cdot \boldsymbol{\mu}_{ab}^l) \\ & + \frac{4\pi\omega}{\hbar^3 \gamma_b c g_b} |E_2|^2 \cdot I_m \left\{ \int \frac{i dv}{(\Delta_{ba} + kv)} \cdot \int W_b(v' \rightarrow v) \left(\frac{N_a^0(v')}{g_a} - \frac{N_b^0(v')}{g_b} \right) \right. \\ & \cdot \left. \left(\frac{1}{\Delta_{ba} - kv'} - \frac{1}{\Delta_{ba}^* - kv'} \right) dv' \right\} \cdot \text{Trace}(\boldsymbol{\mu}_{ba}^i \boldsymbol{\mu}_{ab}^k) \cdot \text{Trace}(\boldsymbol{\mu}_{ba}^j \cdot \boldsymbol{\mu}_{ab}^l) \\ & + \frac{4\pi\omega}{\hbar^3 c g_a} |E_2|^2 I_m \left\{ \int \frac{\exp(i2kz)}{\Delta_{ba} + kv} dv \cdot \int W_a(v' \rightarrow v) \cdot \left(\frac{N_a^0(v')}{g_a} - \frac{N_b^0(v')}{g_b} \right) \right. \\ & \cdot \left. \left(\frac{1}{2kv' - i\gamma_a} \right) \left(\frac{1}{\Delta_{ba} + kv'} - \frac{1}{\Delta_{ba} - kv'} \right) dv' \right\} \text{Trace}(\boldsymbol{\mu}_{ba}^i \boldsymbol{\mu}_{ab}^k) \cdot \text{Trace}(\boldsymbol{\mu}_{ba}^j \boldsymbol{\mu}_{ab}^l) \\ & + \frac{4\pi\omega}{\hbar^3 c g_b} |E_2|^2 \cdot I_m \left\{ \int \frac{\exp(i2kz)}{\Delta_{ba} + kv} dv \cdot \int W_b(v' \rightarrow v) \cdot \left(\frac{N_a^0(v')}{g_a} - \frac{N_b^0(v')}{g_b} \right) \right. \\ & \cdot \left. \left(\frac{1}{2kv' - i\gamma_b} \right) \cdot \left(\frac{1}{\Delta_{ba} + kv'} - \frac{1}{\Delta_{ba}^* - kv'} \right) dv' \right\} \text{Trace}(\boldsymbol{\mu}_{ba}^i \boldsymbol{\mu}_{ab}^k) \cdot \text{Trace}(\boldsymbol{\mu}_{ba}^j \boldsymbol{\mu}_{ab}^l), \quad (24) \end{aligned}$$

式中 $A_{\alpha\beta\gamma}^{rstv} = \text{Trace}(\mu_{\alpha\beta}^r \cdot \mu_{\beta\alpha}^s \cdot \mu_{\alpha\gamma}^t \cdot \mu_{\gamma\alpha}^v)$ 。

方程(24)右端第一项是 E_2 烧孔效应的直接影响所作出的贡献。第二项和第三项分别是 E_2 烧孔效应在下能级和上能级经过碰撞原子速度和取向重新分布产生的间接影响所作出的贡献。第四项和第五项分别是 E_1 和 E_2 所组成的驻波场在介质的下能级和上能级形成空间光栅, 经过碰撞原子速度和取向发生重新分布产生的间接影响所作出的贡献。空间光栅的直接影响在对速度积分时已消除。

设 E_1 的偏振方向以频率 f_1 转动, E_2 的偏振方向以频率 f_2 转动。当 $E_1 \parallel E_2$ 时, 设这时 E_1 和 E_2 都沿着量子化 z 轴, $\alpha_1^{(3)} = \alpha_1^{(3)'}$; 当 $E_1 \perp E_2$ 时, 设这时 E_1 沿着量子化 z 轴, E_2 沿着量子化 x 轴, $\alpha_1^{(3)} = \alpha_1^{(3)''}$ 。计算两种情况下 $\alpha_1^{(3)}$ 之差 $\Delta\alpha = \alpha_1^{(3)''} - \alpha_1^{(3)'}$, $\Delta\alpha$ 正比于由互饱和引起的内调制信号的幅度。

$$\begin{aligned} \Delta\alpha = & \frac{4\pi^{3/2}}{\hbar^3 v} \left(\frac{N_a^0}{g_a} - \frac{N_b^0}{g_b} \right) \left[\frac{A_{abb}^{zzzz} - A_{abb}^{zzxx}}{\gamma_a + I_a^{vc}} - \frac{A_{baa}^{zzzz} - A_{baa}^{zzxx}}{\gamma_b + I_b^{vc}} \right] \frac{\gamma_{ba} + \Gamma_{ba}^{ph}}{(\omega_{ab} + \Delta_{ba}^{ph} - \omega)^2 + (\gamma_{ba} + \Gamma_{ba}^{ph})^2} \\ & \cdot |E_2|^2 - \frac{4\pi\omega}{\hbar c g_a} |E_2|^2 \cdot I_m \left\{ \int \frac{\exp(i2kz)}{\Delta_{ba} + kv} dv \cdot \int W_a(v' \rightarrow v) \cdot \left(\frac{N_a^0(v')}{g_a} - \frac{N_b^0(v')}{g_b} \right) \right. \\ & \cdot \left(\frac{1}{2kv' - i\gamma_a} \right) \left(\frac{1}{\Delta_{ba} + kv'} - \frac{1}{\Delta_{ba}^* - kv'} \right) dv' \left. \right\} [\text{Trace}(\mu_{ba}^z \cdot \mu_{ab}^z)]^2 \\ & - \frac{4\pi\omega}{\hbar^3 c g_b} |E_2|^2 \cdot I_m \left\{ \int \frac{\exp(i2kz)}{\Delta_{ba} + kv} dv \cdot \int W_b(v' \rightarrow v) \left(\frac{N_a^0(v')}{g_a} - \frac{N_b^0(v')}{g_b} \right) \right. \\ & \cdot \left. \left(\frac{1}{2kv' - i\gamma_b} \right) \left(\frac{1}{\Delta_{ba} + kv'} - \frac{1}{\Delta_{ba}^* - kv'} \right) dv' \right\} [\text{Trace}(\mu_{ba}^z \cdot \mu_{ab}^z)]^2. \quad (25) \end{aligned}$$

在计算 $\Delta\alpha$ 时, 因为有

$$\text{Trace}(\mu_{ba}^z \cdot \mu_{ab}^z) = \text{Trace}(\mu_{ba}^x \cdot \mu_{ab}^x), \quad (26)$$

所以 $\alpha_1^{(3)}$ 和 $\alpha_1^{(3)'}$ 的第二、第三项对应相等, 相减时相消。 $\alpha_1^{(3)}$ 中的第二项和第三项是 E_2 的烧孔效应, 通过碰撞交叉弛豫所产生的影响, 它正是饱和光谱和内调制荧光光谱中 Gaussian 型的多普勒本底的来源。由于 POLINEX 光谱与饱和光谱和内调制荧光光谱不同, 它调制的不是光场的振幅, 而是光场的偏振面, 并且从荧光中吸取其中的内调制信号, 因此, 正如上面计算中反映出来的那样, 它消除了原子之间的碰撞交叉弛豫产生的多普勒本底。又因为

$$\text{Trace}(\mu_{ba}^x \cdot \mu_{ab}^x) = \text{Trace}(\mu_{ba}^y \cdot \mu_{ab}^y) = 0, \quad (27)$$

所以 $\alpha_1^{(3)''}$ 的第四、第五项为 0, 这说明当 $E_1 \perp E_2$ 时, 没有驻波效应。方程(25)和(26)的物理含义是对于各向同性的气体介质, 其一阶极化率 $\chi^{(1)}$ 成立下列方程:

$$\chi_{ii}^{(1)} = \chi_{jj}^{(1)} = \chi_{kk}^{(1)}; \quad \chi_{ij}^{(1)} = 0, \quad (i \neq j). \quad (28)$$

方程(24)是我们确切地知道前碰撞参数所能得到的最终结果。如果采用唯象的“强”碰撞模型来描写 $W_a(v' \rightarrow v)$ 和 $W_b(v' \rightarrow v)$, 设

$$W_\alpha(v' \rightarrow v) \alpha f(v) = (\pi v^2)^{-1/2} \exp(-v^2/\bar{v}^2), \quad (\alpha = a \text{ 或 } b), \quad (29)$$

则方程(25)可简化为

$$\begin{aligned} \Delta\alpha = & \frac{2\pi^{3/2}}{\hbar^3 v} \cdot \left(\frac{N_a^0}{g_a} - \frac{N_b^0}{g_b} \right) \left(\frac{1}{\gamma_a + I_a^{vc}} + \frac{1}{\gamma_b + I_b^{vc}} \right) \{ (A_{baa}^{zzzz} - A_{baa}^{zzxx}) + (A_{abb}^{zzzz} - A_{abb}^{zzxx}) \\ & + \gamma [(A_{abb}^{zzzz} - A_{abb}^{zzxx}) - (A_{baa}^{zzzz} - A_{baa}^{zzxx})] \} \frac{(\gamma_{ba} + \Gamma_{ba}^{ph})}{(\omega_{ab} + \Delta_{ba}^{ph} - \omega)^2 + (\gamma_{ba} + \Gamma_{ba}^{ph})^2} |E_2|^2, \quad (30) \end{aligned}$$

式中
$$\gamma = [(\gamma_b + \Gamma_b^{vc}) + (\gamma_a + \Gamma_a^{vc})] / [(\gamma_b + \Gamma_b^{vc}) + (\gamma_a + \Gamma_a^{vc})]. \quad (31)$$

按完全相同的程序, 可以计算, 由于光场 I_1 的存在通过互饱和对光场 I_2 吸收系数产生的变化, $\alpha_2^{(3)} = 4\pi\omega I_m \chi^{(3)} \cdot |E_1|^2 / c$, 并且计算 $E_1 \parallel E_2$ 和 $E_1 \perp E_2$, 两种情况下 $\alpha_2^{(3)}$ 之差 $\Delta\alpha'$ 。

荧光强度正比于介质对光场 I_1 和 I_2 的吸收, 荧光强度中的内调制信号正比于吸收中的互饱和部分。当 E_1 以频率 f_1 转动, E_2 以频率 f_2 转动时, 频率为 $2|f_1 \pm f_2|$ 的内调制信号的幅度正比于 $\Delta(\Delta I)$ 。

$$\Delta(\Delta I) = \Delta(\Delta I_1^{(3)}) + \Delta(\Delta I_2^{(3)}) = I_1 \Delta\alpha \cdot l + I_2 \Delta\alpha' \cdot l, \quad (32)$$

式中 l 是气体样品吸收盒的长度。把 $\Delta\alpha$ 和 $\Delta\alpha'$ 的表示式代入方程(32), 得

$$\begin{aligned} \Delta(\Delta I) = & \frac{\pi^{1/2} l \cdot c}{2\hbar^3 v} \left(\frac{N_a^0}{g_a} - \frac{N_b^0}{g_b} \right) \cdot \left(\frac{1}{\gamma_a + \Gamma_a^{vc}} + \frac{1}{\gamma_b + \Gamma_b^{vc}} \right) \{ (A_{baa}^{zzzz} - A_{baa}^{zzzx}) + (A_{abb}^{zzzz} - A_{abb}^{zzzx}) \\ & + \gamma [(A_{abb}^{zzzz} - A_{abb}^{zzzx}) - (A_{baa}^{zzzz} - A_{baa}^{zzzx})] \} \frac{(\gamma_{ba} + \Gamma_{ba}^{ph})}{(\omega_{ab} + \Delta_{ba}^{ph} - \omega) + (\gamma_{ba} + \Gamma_{ba}^{ph})^2} \\ & \cdot |E_1|^2 \cdot |E_2|^2. \end{aligned} \quad (33)$$

对 Ne 的 $1s_5 \rightarrow 2p_2$, 5882 Å 跃迁来说, 下能级 a , $J=2$, 上能级 b , $J'=1$, 通过计算可得

$$\begin{aligned} A_{baa}^{zzzz} &= \frac{34}{900} e^4 \cdot \|T_{JJ'}^{(1)}\|^4; & A_{baa}^{zzzx} &= \frac{33}{900} e^4 \|T_{JJ'}^{(1)}\|^4; \\ A_{abb}^{zzzz} &= \frac{34}{900} e^4 \cdot \|T_{JJ'}^{(1)}\|^4; & A_{abb}^{zzzx} &= \frac{13}{900} e^4 \|T_{JJ'}^{(1)}\|^4. \end{aligned} \quad (34)$$

代入方程(33)得

$$\begin{aligned} \Delta(\Delta I) = & \frac{\pi^{1/2} l c e^4}{900 \hbar^3 v} \left(\frac{N_a^0}{g_a} - \frac{N_b^0}{g_b} \right) \left(\frac{1}{\gamma_a + \Gamma_a^{vc}} + \frac{1}{\gamma_b + \Gamma_b^{vc}} \right) (11 + 10\gamma) \\ & \times \frac{\|T_{JJ'}^{(1)}\|^4 \cdot (\gamma_{ba} + \Gamma_{ba}^{ph}) \cdot |E_1|^2 \cdot |E_2|^2}{(\omega_{ab} + \Delta_{ba}^{ph} - \omega) + (\gamma_{ba} + \Gamma_{ba}^{ph})^2}. \end{aligned} \quad (35)$$

从方程(35)可知, 内调制信号具有消多普勒本底的洛仑茨线型, 且有压力移动和压力加宽发生, 谱线中心在 $(\omega_{ab} + \Delta_{ba}^{ph})$, 半宽度是 $(\gamma_{ba} + \Gamma_{ba}^{ph})$, 这是速率方程的分析中未能指出的。

三、讨 论

从上面的分析中可知, 由于偏振内调制激励光谱综合了内调制光谱学和偏振光谱学的特点, 因而显示了一定的优越性。其光谱与以往的内调制光谱学不同, 不是调制激光的振幅, 而是调制激光的偏振态, 然后吸取其中的内调制信号, 所以消除了原子之间速度变化的碰撞所引起的多普勒本底。上节中计算 $\Delta\alpha$ 时, $\alpha_1^{(3)''}$ 和 $\alpha_1^{(3)'}$ 的第二、第三项对应相等, 相减时相消, 正反映了这一特点。另外, 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, 与介质吸收有关, 而与介质色散无关, 即如方程(19)所示, 与 $\chi^{(3)}$ 的虚部有关而与实部无关, 从而避免了以往的偏振光谱中, 谱线不对称和谱线中心移动的问题。我们用半经典方法对上述问题作了理论分析, 得到了和实验一致的结论。半经典方法与速率方程方法不同, 它不仅考虑到光场与原子相互作用情况下, 碰撞对原子运动速度的影响, 还考虑到碰撞对原子态位相的影响, 故能反映出速率方程方法未能得到的谱线的压力加宽和压力移动。

此外, 用半经典理论分析 POLINEX 光谱时, 涉及到一系列碰撞参数, 碰撞参数的确定有助于我们了解谱线, 反之, 谱线的精确测定也为我们估算碰撞参数提供了有用的信息, 进而有助于我们研究各种碰撞过程, 从这点上说, POLINEX 光谱也是研究碰撞的有力工具。

参 考 文 献

- [1] T. W. Hänsch *et al.*; *Opt. Commun.*, 1981, **37**, No. 2(15 Apr), 87; *ibid.*, 1981, **38**, No. 1(1 Jul), 47.
 [2] Ph. Dabkiewicz, T. W. Hänsch *et al.*; «*Laser Spectroscopy*» (Eds. A.R.W. Mckellar, T. Oka *et al.*, Springer Verlag, 1981), 178.
 [3] P. W. Smith, T. W. Hänsch; *Phys. Rev. Lett.*, 1971, **26**, No. 13(29 Mar), 740.
 [4] R. E. Teets, F. V. Kowalski *et al.*; «*Proc. SPIE*» (Ed by A. H. Zewail, Wash. SPIE, 1977), Vol. 113, 80.
 [5] 沈维滨、王兆永; «*光学学报*», 1982, **2**, No. 2(Mar), 159.
 [6] M. Sargent, M. O. Scully *et al.*; «*Laser Physics*» (Addison-Wesley, 1974).
 [7] T. W. Hänsch, P. Toschek; *Z. Physik*, 1970, **236**, No. 3(30 Jul), 213.
 [8] P. R. Berman, W. E. Lamb Jr.; *Phys. Rev.*, 1970, **A2**, No. 6(Dec), 2435.
 [9] P. R. Berman, W. E. Lamb Jr.; *Phys. Rev.*, 1971, **A4**, No. 1(Jul), 319.
 [10] P. R. Berman; *Phys. Rev.*, 1972, **A5**, No. 2(Feb), 927.
 [11] P. R. Berman; *Appl. Phys.*, 1975, **6**, No. 3(Apr), 283.
 [12] P. R. Berman, W. E. Lamb Jr.; *Phys. Rev.*, 1969, **187**, No. 1(5 Nov), 221.
 [13] P. R. Berman W. E. Lamb Jr., *Phys. Rev.*, 1972, **A6**, No. 6(Dec), 2157.

Atomic velocity-changing collisions in polarization excitation spectroscopy (II)

SHEN WEIDIAN AND WANG ZHAOYONG

(Department of Physics, Fudan University, Shanghai)

(Received 3 September 1981)

Abstract

Polarization intermodulated excitation (POLINEX) spectroscopy is a new nonlinear high resolution spectroscopy. It combines polarization spectroscopy with intermodulated fluorescence spectroscopy. So the POLINEX spectroscopy has some advantages of them.

In author's former paper, we had used the rate equation approach to analyze how the Doppler background caused by atomic collisions was eliminated and how the Lorentzian line shape was kept.

In this paper, we use the semiclassical theory of Lamb to analyze the POLINEX spectroscopy further more. This method is more reasonable. Considering laser beam's polarization, energy level's degeneracy and collision cross relaxation, by means of the equation of motion of density matrix, we have calculated the polarizability of the atomic system submitted to laser beams I_1 and I_2 to the third order $\chi^{(3)}$. Then, from $\chi^{(3)}$ we have evaluated nonlinear components of the absorption coefficient α . So we can obtain the strength and shape of the intermodulated signal in POLINEX spectroscopy.

The conclusion is in conformity with the experimental results. Moreover, it predicts the pressure shift and pressure broadening which can't be predicted by the rate equation approach.