2

偏振内调制激励光谱学 (POLINEX) 中的相位正交特性*

严光耀 王兆永 (华东师范大学物理系) (复旦大学物理系)

提 要

本文从理论上和实验上阐明了在偏振六调制激励光谱学中的相位正交特性。当一束线偏振光被偏振 调制,而另一束线偏振光的偏振方向固定时,适当调节后一束光的偏振方向,以使多普勒加宽背景与洛仑 兹信号的相位正交,可以获得无多普勒的光谱。

一、引 言

偏振内调制激励光谱学(缩写为 POLINEX) 是近期由 Hänseh 等人^[13] 发展起来的一门 崭新的无多普勒光谱技术。它结合了偏振光谱和内调制荧光光谱的特点,克服了这两个早 年形成的无多普勒光谱技术的弊病。目前,已有若干篇文章介绍了这一光谱技术的应用^[2,3]。 尤其用它来研究含有亚稳态能级的跃迁时,更显现出独特的优越性。在这些跃迁中,必须考 虑亚稳态的长寿命对原子碰撞后速度再分布的影响。因而在采用内调制荧光光谱技术时, 无法消除由它引起的多普勒背景。在偏振光谱中,尽管不存在这类背景,可是二向色性及色 散的频率依赖关系会带来线型的不对称性。这些因素都会影响光谱的分辨率。在偏振内调 制激励光谱学中,我们取得的讯号来源于某一取向的原子,而经受了速度改变碰撞的原子在 空间的取向是各向同性的。所以这一碰撞在偏振内调制激励光谱中不会带来多普 勒背景。 遗憾的是,当用直线偏振光时,取向原子发射的荧光具有各向异性的角分布特性。如果我们 取空间某一立体角中的荧光时,仍会存在多普勒加宽背景。为此,在文献[1]介绍的实验中,

相位正交法主要是采用固定方向的直线偏振器代替旋转方向的直线偏振器。适当调节 此固定偏振器的取向时,可以使多普勒加宽背景与无多普勒光谱信号相位正交,因而可以用 一锁相放大器获得无多普勒加宽背景的光谱。本文将首先从速率方程近似出发,在理论上 分析这种相位正交法的可行性,然后介绍有关的实验装置、调节步骤及结果。

二、理论推算

为简单起见,我们仅需将原子系统考虑为一个联系这一跃迁的二能级系统。下能级为

收稿日期: 1982年5月3日

^{*} 作者在美国斯坦福大学进修期间完成了该文涉及的实验部分工作

a, 上能级为b。根据速率方程近似,可以获得一级近似下的稳态粒子数⁴³

$$n_{m}(v) = n(v) - \sum [n(v) - n'(v)] \gamma_{a}^{-1} (I_{2} \sigma_{mm'}^{(1)} + I_{2} \sigma_{mm'}^{(2)}) (\hbar \omega)^{-1}, \qquad (1)$$

$$n'_{m'}(v) = n'(v) + \sum_{a} \left[n(v) - n'(v) \right] \gamma_b^{-1} \left(I_1 \sigma_{mm'}^{(1)} + I_3 \sigma_{mm'}^{(2)} \right) \left(\hbar \omega \right)^{-1}, \tag{2}$$

 $n(v) = n_{\rm e}f(v) = [N_{\rm ob}/(2J+1)]f(v), \quad n'(v) = n_{\rm e}'f(v) = [N_{\rm bb}/(2J'+1)]f(v), \quad (3)$

其中 n(v)、n'(v) 是没有外场作用时 a、b 能级的各简并子能级上的粒子数密度, f(v) 是麦 克斯韦速度分布函数, γ_{0} 、 γ_{b} 分别为能级 a 与 b 的弛豫速率。 I_{1} 、 I_{2} 是反向传输的 外场 的 光强, 它们的偏振态分别为(1)、(2)。式中的 $\sigma_{mm'}^{(0)}(i=1$ 或 2)表示粒子在偏振态为(i)的光 场作用下, 从 m 能级跃迁到 m' 能级的吸收跃迁截面。按 $\sigma_{mm'}^{(0)}$ 的定义, 不难写出

其中 $L(\omega_{ab} - \omega \pm kv)$ 是洛伦兹函数,式中的"±"号表示在 i=1 时取"+"号,而在 i=2 时取 "-"号。显然,(1) 式右边的第二项代表了在外场作用下,下能级粒子数按速度分布中形成 的"孔"。而(2) 式右边第二项却代表上能级粒子数速度分布中形成的"峰"。

根据跃迁速率的定义,速度为 v 单位速度间隔的原子在光场(1)与(2)作用下,从 a 态吸 收光子跃迁到 b 态的跃迁速率(一级介)可记为

$$p(v) = \sum_{m,m'} \left[n_m(v) - n_{m'}(v) \right] \left(I_1 \sigma_{mm'}^{(1)} + I_{\mathbf{g}_{mm'}}^{(2)} \right) (\hbar \omega)^{-1} \mathbf{o}$$

对于线性偏振光, m=m', 所以

$$p(v) = [n(v) - n'(v)] (\hbar\omega)^{-1} \{ (I_1 \sum_m \sigma_{mm}^{(1)} + I_2 \sum_m \sigma_{mm}^{(2)}) - [(\gamma_a)^{-1} + (\gamma_b)^{-1}] (\hbar\omega)^{-1} [I_1^2 \sum_m (\sigma_{mm}^{(1)})^2 + I_2^2 \sum_m (\sigma_{mm}^{(2)})^2 + I_2 I_1 \sum_m \sigma_{mm}^{(2)} \sigma_{mm}^{(1)} + I_1 I_2 \sum_m \sigma_{mm}^{(1)} \sigma_{mm}^{(2)}] \}_{\circ}$$
(5)

上述等式由三部分组成,第一部分为线性吸收的跃迁速率,它与 $\sum_{m} \sigma_{m,m}^{(0)}$ 有关。第二部分为 两束光的自饱和所引起的跃迁速率的减少项,它与 $\sum_{m} (\sigma_{m,m}^{(0)})^{3}$ 有关,这两部分均不依赖于光 的偏振态。在光强恒定的偏振内调制激励光谱学中,这两部分只是产生不随时间而变化的 直流信号,锁相放大器取出的信号仅仅取决于与 $\sum_{m} \sigma_{m,m}^{(0)} \sigma_{m,m}^{(0)}$ (或 $\sum_{m} \sigma_{m,m}^{(0)} \sigma_{m,m}^{(0)}$)相联系的第三 部分,即两束光的互饱和引起的跃迁速率的减少项,这一项依赖于二束光的相对偏振位置。 因而使用光强恒定和偏振方向调制的光束时,这一项提供了一个调制信号。在文献[1]中, 我们只列出了对信号有贡献的这一项,但在计及荧光角分布时,必须保存整个激励速率。此 外,(5)式所表示的激发速率包含了两种取向原子的激发。一种是吸收偏振态为(1)的光场 能量跃迁到 b态,而另一种是吸收偏振态为(2)的光场能量跃迁到 b态。这两种原子发射的 荧光角分布也必然因它们的不同取向而不同。所以在(5)式中的两个互饱和项的第一项表 示在场(2)饱和作用下,吸收场(1)的激励速率,这类原子的取向仅与偏振态(1)有关,而后面 一项表示在场(1)饱和吸收作用下,吸收场(2)的激励速率,这类原子的取向仅与偏振态(2) 有关。虽然,在数值上它们的大小是一样的,但对某一空间方向上的荧光的贡献,因原子取 向的不同而各异。为此,我们分二项列在(5)式中,整个激励速率是 p(v) 对 v 的积分

$$P = \int p(v) dv = P^{(1)} + P^{(3)},$$

式中 $P^{(1)} 与 P^{(3)}$ 分别代表取向为(1)或(2)的原子的激励速率。 $P^{(3)}$ 的值可表示为

$$P^{(3)} = (n_{e} - n_{e}') (\pi c / \omega_{ab}) \left[(4\pi / \hbar^{2} c) |\mu_{ab}|^{2} \right] I_{2} \left\{ \left[1 - \frac{I_{2}}{2\gamma_{ab}} \left(\frac{1}{\gamma_{a}} + \frac{1}{\gamma_{b}} \right) \left(\frac{4\pi}{\hbar^{2} c} |\mu_{ab}|^{2} \right) \right] D(\omega) - \frac{I_{1}}{2\gamma_{ab}} \left(\frac{1}{2\gamma_{ab}} + \frac{1}{\gamma_{b}} \right) \left(\frac{4\pi}{\hbar^{2} c} |\mu_{ab}|^{2} \right) \right] D(\omega)$$

$$= \frac{I_{1}}{2\gamma_{ab}} \left(\frac{1}{2\gamma_{ab}} + \frac{1}{2\gamma_{ab}} \right) \left[1 + 5K(\tau) \right] \left(\frac{4\pi}{4\tau} + \frac{1}{2\gamma_{ab}} - \frac{\gamma_{ab}}{2\gamma_{ab}} - \frac{1}{2\gamma_{ab}} \right) \left[\frac{4\pi}{4\tau} + \frac{1}{2\gamma_{ab}} \right] D(\omega)$$
(6)

$$= \frac{-\frac{1}{2} \left(\frac{-}{\gamma_a} + \frac{-}{\gamma_b} \right) \left[1 + \xi K \left(\varphi \right) \right] \left(\frac{1}{\hbar^3 c} \left| \mu_{ab} \right|^2 \right) \frac{-}{(\omega - \omega_{ab})^2 + \gamma_{ab}^2} D(\omega_{ab}) \right\}, \tag{6}$$

式中 F 刃 耶重的 取 问 尿 丁 澉 께 迷 平 。 円 仟 , 刂 以 与 击 4 D(ω)是多普勒分布函数

$$\mathcal{D}(\omega) = (\omega_{ab}/\sqrt{\pi c \Delta \omega_D}) \exp\left[-(\omega - \omega_{ab})^2/(\Delta \omega_D)^2\right],$$

式中 ω_{0} 是多普勒宽度, $K(\varphi)$ 是光场(1)与(2)的偏振方向夹角 φ 的周期函数, ξ 是各向异 性因子[5]。

对于 Ne 的 5882 Å $(1S_5 - 2P_2)$ 跃迁, $J = 1 \rightarrow J' = 2$, 荧光角分布与原 子极化取向的关系由图1表示63。对于固定在某一方向上的光电倍增管 来说,如原子的取向周期性调制,它所接收到的荧光强度也将随之调制, 调制频率应是原子取向调制频率的二倍。若我们只计及调制的基波,并 设调制度为 η ,即可求得这一各向异性的角分布所引进的信号大小。

设以光电倍增管(PM)方向为基准(见图 2),固定偏振片的偏振方向 与基准的夹角为 θ ,旋转偏振器与光电倍增管方向的夹角为 $2\pi(\Omega_{s}t+$ φ_0), φ_0 为初始角, Ω_2 是线偏振器的旋转频率。

调制的荧光信号 S(t) 可以记为

$$S(t) \sim \left\{ \begin{bmatrix} I_2 - I_2^2 \frac{1}{2\gamma_{ab}} \left(\frac{1}{\gamma_a} + \frac{1}{\gamma_b} \right) \left(\frac{4\pi}{\hbar^2 c} \right) |\mu_{ab}|^2 \end{bmatrix} D(\omega) \\ - \frac{I_1 I_2}{2} \left(\frac{1}{\gamma_a} + \frac{1}{\gamma_b} \right) \left(\frac{4\pi}{\hbar^2 c} \right) |\mu_{ab}|^2 \frac{\gamma_{ab}}{(\omega - \omega_{ab})^2 + \gamma_{ab}^2} D(\omega_{ab}) \right\} \\ \times \eta \cos 2 \left(2\pi \Omega_2 t + \varphi_0 \right) - I_1 I_2 \left(\frac{1}{\gamma_a} + \frac{1}{\gamma_b} \right) \left(\frac{4\pi}{\hbar^2 c} |\mu_{ab}|^2 \right)^2 \\ \times \frac{\gamma_{ab}}{(\omega - \omega_{ab})^2 + \gamma_{ab}^2} D(\omega_{ab}) \xi \cos 2 \left(2\pi \Omega_2 t + \varphi_0 - \theta \right),$$
(7)

(7) 式仅列出了对锁定在2Ω₂频率上的锁相放大器输出信号有贡献的基 波成分,它由二部分组成:一部分是多普勒线型与洛仑兹线型的叠加;另一部分是中心在ωω

固定偏振 00P. 的 偏振方向 基线 P.M. R

图 2 光电倍增管与固定偏振器 偏振方向夹角θ的示意图

Fig. 2 The polarization direction of the fixed linear polarizer with respect to the P. M. position

J = 1 - J' = 2的洛仑兹线型。 尽管它们的调制频率均为 $2\Omega_{s}$, 但具 有不同初始相位,前者为 $2\varphi_0$,后者为 $2(\varphi_0 - \theta)$ 。如适 当调节 θ 角,即固定偏振器的起偏方向与PM的夹角。 使 2θ=±90°,则这二部分信号"正交",就可以利用锁 相技术分别取出。图3描述了取得的讯号与固定偏振 器方向及锁相放大器上的相位之间的关系。

如果两束反向传输的圆偏振光分别通过两块旋转 的线偏振器,它们的旋转频率分别为 Ω_1 与 Ω_2 ,等式 P⁽¹⁾ 与 P⁽³⁾ 的最初两项分别代表调制频率为2Ω₁ 与

图1 极化原子荧 光辐射与它极化方 向的角分布特性 Fig. 1 The angular distribution of fluorescent sidelight from an atom excited by linearly polarized light for



6 期



号内的"土"号取决于两块旋转线偏振器的转向。它 的数值正是对应等式 (7) 右边的最后一项。但不管 怎样,当锁相放大器锁定于 Q1 与 Q2 的和频率 2(Q1 $+\Omega_{a}$)时(即两块旋转线偏振器反向旋转),我们只能 得到以ω=ωω为中心的洛仑兹线型。 这一实验结 果已在文献[1]中给出。在这里,我们也不难从上述 推导中理解。

三、实验与讨论

实验装置如图 4 所示,由 CR599-21 染料激光 器输出的激光束经一线偏振器与四分之一波片以获 取圆偏振光。然后由一分束器分成近乎等光强的二 束,它们分别经反射镜 $M_1 与 M_2$ 和通过二线偏振 器 P_1 、 P_2 反向传输到充以 200 Torr 的 Ne 试样 池。 Pa是一旋转的线偏振器,旋转频率约为150 Hz。试 样池长 120 mm, 直径为 14 mm。一个 30 MHz 的射 频发生器通过围绕试样池的线圈以激发 Ne 放电。一 个带有 5882 Å 窄带滤光片的 1P21 光电 倍 增管 垂 直于试样池轴线方向放置,以收集垂直于轴线方向 的共振荧光。光电倍增管输出经一锁相放大器由记

录仪记录。由于光学元件的不完善性以及一些反射镜的非正入射,以使经旋转偏振器 Pa进 入试样池的光束不仅偏振方向调制,而且也会存在一定的振幅调制,它的调制频率也是 $2\Omega_{a}$ 。显然,这一不完善性会带来多普勒加宽背景,所以在 P_{a} 前面,我们放了一块玻璃平板 作为补偿片,以获取理想的振幅恒定的偏振调制光。但在本实验中,我们可以利用产生的多 普勒加宽背景去抵消由荧光角分布引起的背景信号,这两个背景信号的调制频率均为 $2\Omega_2$, 而初相位依赖于不同元件。前者依赖于补偿片,后者依赖于旋转线偏振器的初相位 φ₀。当 仔细调节补偿片方向,固定偏振器 P1方向以及锁相放大器相位,最后可以获得较小的多普



Fig. 4 The experimental apparatus for Doppler-free POLINEX spectroscopy of neon using one polarization modulated beam



图 5 多普勒加宽讯号与无多普勒信号之间相位正交的实验结果 Fig. 5 Data demonstrating the orthogonality relationship between the Doppler-free and Doppler-broadened signals

勒背景, 它又与洛仑兹线型相正交。这样可以由锁相放大器分别取出。图5表示这一相位 正交特性的实验结果。我们用这一方法测量了 Ne 的 5882 Å 的同位素位移, 并与内调制荧 光光谱方法相比较⁵⁷³。

四、结 论

在偏振内调制激励光谱中,如果只采用一束调制的直线偏振光,并适当调节另一束直线 偏振光方向时,可以使由荧光角分布引起的残留多普勒加宽背景信号与互饱和产生的洛仑 兹信号的相位正交。在通常的振幅调制的内调制方法中,我们必须以不同频率调制两束光, 并从讯号的不同调制频率上区分出这两个不同线型的信号。但在偏振内调制激励光谱中, 尽管只有一束被偏振调制,多普勒加宽背景与洛仑兹线型信号的调制频率相同,但我们可以 用相位的差异去区分这两个信号。本文从理论推算上阐明了这一可能性,并获得了实验的 证明。

参考文献

- [1] T. W. Hänsch, D. R. Lyons et al.; Opt. Commun., 1981, 37, No. 2 (15 Apr), 87.
- [2] D. R. Lyons, A. L. Schawlow et al.; Opt. Commun., 1981, 38, No. 1 (1 Jul), 35.
- [3] Ph. Dabkiewicz, T. W. Hänsch et al.; «Laser Spectroscopy V», (Springer-Verlag Berlin Hidelberg New-York, 1981), 178.
- [4] T. W. Hänsch; Proc. Internat. School Phys., "Enrico Fermi", Course on Nonlinear Spectroscopy, Varenna, Italy (North-Halland Publishing Company, Amsterdan, 1977), 17.
- [5] R. E. Teets, F. V. Kowalski et al.; Proc. SPIE, 1977, 113, 80.
- [6] T. W. Hänsch, P. Toschek; Phys. Lett., 1966, 22, No. 2 (1 Aug), 170.
- [7] 沈维滇,王兆永;《光学学报》, 1982, 2, No. 2 (Mar), 159.

3 卷

Phase orthogonality in polarization intermodulated excitation (POLINEX) spectroscopy

YAN GUANGYAO (Department of Physics, East China Normal University Shanghai)

WANG ZHAOYONG (Department of Physics, Fudan University Shanghai)

(Received 3 May 1982)

Abstract

This paper reports the phase orthogonality both theoretically and experimentally in POLINEX spectroscopy with a modulated polarization and a fixed polarization of two linearly polarized optical beams.

It is possible to make the phase of the Doppler-free signal orthogonal to that of the Doppler-broadened background, if the fixed polarizer is properly adjusted.