

# 近共振激发下钠蒸气锥形发光特性的研究

张道中 毛 玲 程文希  
(中国科学院物理研究所)

## 提 要

利用线偏振的中等强度染料激光光束,调谐在钠的双D线之间来激发钠蒸气时,观察到了前向发射的与激光偏振方向垂直的锥形辐射。测量了它的光谱特性以及它与钠原子密度,入射激光参量,缓冲气体密度的关系。所观测到的实验结果可以利用受激瑞利散射与由这种散射诱导的原子瞬态共振场的混频解释。

## 一、引 言

近年来,对于激光入射到原子蒸气中所引起的锥形光辐射的现象引起人们广泛的兴趣。这类现象最早是在自聚焦<sup>[1]</sup>及自散焦<sup>[2]</sup>的实验中观察到的。其中锥形辐射的频率与入射激光的频率相同。最近,在Ba<sup>[3]</sup>、Sr<sup>[4]</sup>和Na<sup>[5]</sup>等不少原子蒸气中观察到,当入射激光的频率接近原子的某一共振频率时,会出现与入射频率不同的锥形发射。到目前为止,主要的理论模型有两种:一是M. Leberre-Ronsseau等的模型<sup>[6]</sup>。他们认为偏离共振的激光可以在原子共振线上诱导出一个瞬态光场,这个光场再与入射光耦合,从而得到了频率不同于前者的发光。二是D. Harter等<sup>[7]</sup>的模型。他们认为激光产生的Rabi边带由于四波混频而被增强,从而发射出频率为Rabi边带频率的光。这些模型在解释已观察到的某些现象中,如锥形发光的频率、锥角大小同原子密度、偏调的关系上是比较成功的。但对另一些现象仍不能满意地加以解释,其中包括当激光调谐到钠的双D线之间的某些位置(无色散点)时会出现偏振方向与入射激光的偏振方向垂直的锥形发光<sup>[8]</sup>。针对这个问题,我们测量了当把激光调谐在5893 Å~5895.5 Å时的钠锥形发光的光谱及其时间分辨,以及它与钠原子密度、入射激光参量、缓冲气体气压的关系。并试图用激光的受激瑞利散射与由这个散射所诱导的原子的瞬态共振场之间的耦合来解释所观察到的实验结果。

## 二、实 验

实验装置如图1所示。

Nd:YAG激光泵浦的R6G染料激光振荡-放大器<sup>[8]</sup>在钠双D线附近的功率为10~60kW,脉冲宽度为7~8ns,光谱线宽为0.2 Å,重复率为10/s。为了改进入射光束的空间性质,在光束进入热管炉前先通过一个直径为1.5mm的小孔光阑(这个小孔的存在与否并不影响锥形发光的所有特性)。由于染料激光器所用的棱镜扩束器是以布氏角放置的,又在

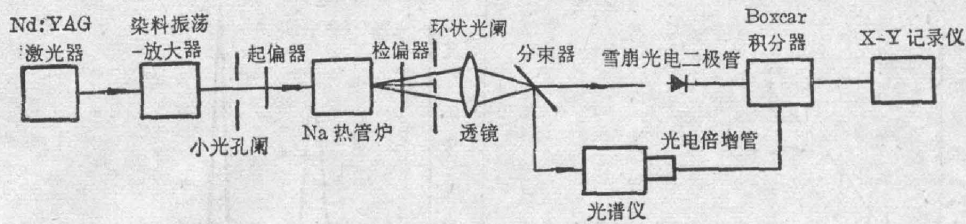


图1 实验装置示意图

Fig. 1 Experimental set up

染料放大器及振荡器之间插入一个格兰棱镜,因此染料激光束基本上是线偏振的。炉前的起偏器的作用是完全消除另一偏振方向的激光分量,进一步提高入射光束的偏振度及减小染料荧光对测量的干扰。Na 热管炉是由直径为 30mm 的不锈钢管及与管轴斜倾  $10^\circ$  的两个端面石英窗片构成,在靠近石英窗片处加水冷套以防止 Na 蒸气凝聚在窗片上。热管炉工作温度在  $330^\circ\text{C}\sim 450^\circ\text{C}$  的范围里,工作区域长度为  $2\sim 3\text{cm}$ 。一般情况下,缓冲气体 Ar 的气压为 6 Torr。染料激光束不经聚焦直接进入 Na 热管炉。当线偏振激光调谐在  $5893\text{Å}\sim 5895.5\text{Å}$  之间,入射激光功率大于 10 kW, Na 原子密度  $N$  超过  $2\times 10^{15}\text{cm}^{-3}$  及缓冲气体(Ar)气压小于 20 Torr 时,在激光传播方向上,通过一个与起偏器垂直安置的检偏器,在垂直于激光束的屏幕上,可以看到在扩展的中心光点周围有一个清晰的,有一定角向厚度的环状光圈。(见图 2)。

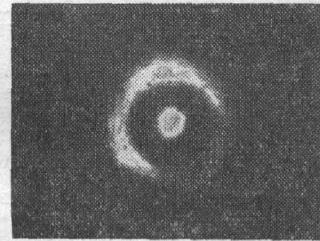


图2 环状光圈的 photograph

Fig. 2 Photograph of conical emission, its polarization is perpendicular to the polarization of the incident laser

这个光环的光谱特性是用 WPG-100 型平面光栅光谱仪及 EMI 9592B 型光电倍增管来测量的。光谱的时间特性是用 ApD-Si 保护环型光电雪崩二极管(响应时间  $\sim 1\text{ns}$ )来测量的。为了尽可能消除从中心透过的光的影响,在发光进入测量仪器前,用一个环形光阑把中心亮点挡住,只让环状光通过,并经聚焦进入光谱仪狭缝或光电二极管。接收到的信号或送入 Boxcar 积分器平均后由 X-Y 记录仪记录,或在 Tektronix 475A 型示波器直接读数。应用这个装置所得到的实验结果主要有以下几点:

(1) 光环的大小与偏调  $\Delta(\Delta=\lambda_L-\lambda_{D1}, \lambda_L$  为入射激光波长)及入射激光强度的依赖关系不明显。但环的出现有一个强度阈值,强度过低时( $<10\text{kW}$ )观察不到明显的环。在  $5893\sim 5895.5\text{Å}$  的激光调谐范围内都可以看到这个光环。光环的大小与原子密度有关,当密度变高时,光环变大,光环的角向厚度也变大,并在光环上出现一系列似旋转状的点。在钠原子密度为  $2\times 10^{15}$  到  $2\times 10^{16}\text{cm}^{-3}$  下光环半径  $d$  与密度  $N$  的关系为  $d\propto\sqrt{N}$ 。环的角向厚度约为环半径的 30% 左右。这些结果表示在图 3 中。

(2) 光谱分布: 当  $\lambda_L$  在  $5893\sim 5895.5\text{Å}$  之内时,光环内所包含的波长除  $\lambda_L$  外还分别在它的长波及短波方向各有一个。短波方向的辐射波长为  $\lambda_s$ , 强度比较大,它的线宽比激光线宽略宽些( $\sim 0.5\text{Å}$ )。并且,它的波长随激光波长的改变而改变。长波方向的辐射,其中心波长在  $5896.5\text{Å}$ , 以  $\lambda_a$  表示,其线宽远宽于激光的线宽,约为  $1\text{Å}$  的量级。它的强度比较低。并且,  $\lambda_a$  的位置并不随入射激光波长的改变而变化。当入射激光  $\lambda_L$  在  $5893\text{Å}\sim$

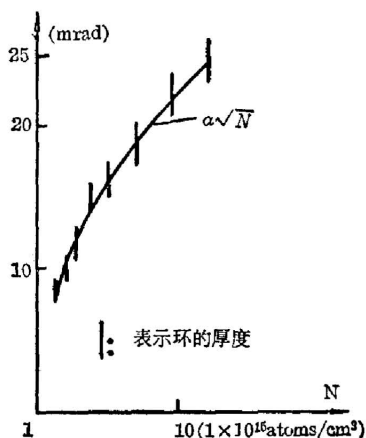


图3 光环半径及角向厚度随密度的变化  
Fig. 3 Radius and radial broadness of conical emission vs density of Na

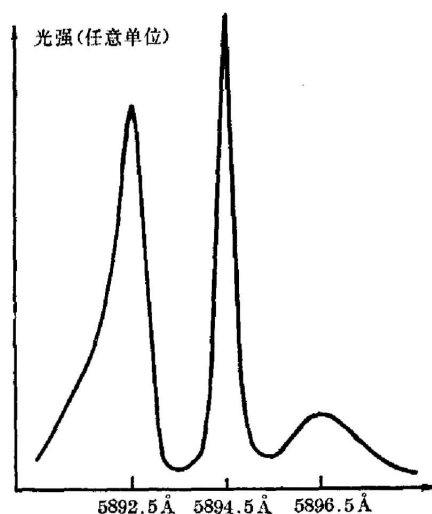


图4 光环上的光谱分布, 入射激光  $\lambda_L = 5894.5 \text{ \AA}$   
Fig. 4 Spectra of the conical emission, laser wavelength is  $5894.5 \text{ \AA}$

5895.5 Å 内调谐时, 基本满足波长关系:  $\lambda_1 = 2\lambda_L - \lambda_a$ 。当入射激光波长固定时, 改变入射激光的强度 (即从环出现的 10 kW 变到 60 kW), 并改变 Na 原子密度  $N$  (从  $2 \times 10^{15} \sim 2 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ ) 时,  $\lambda_1$  的位置没有显著的变化。这就是说,  $\lambda_1$  的位置只决定于入射激光的波长, 与入射光强及 Na 原子密度的关系都不灵敏。同时,  $\lambda_1$  和  $\lambda_a$  都只是出现在光环上, 都只有偏振面垂直于激光偏振面的分量。当用一个小孔光阑代替环状光阑或把检偏器旋转 90° 时, 就观察不到波长为  $\lambda_1$  及  $\lambda_a$  的信号, 而只有波长为  $\lambda_L$  的信号。上述情况表示在图 4 及图 5 中。

(3) 波长为  $\lambda_1$  与  $\lambda_a$  的光强随入射激光强度的变化关系几乎相同: 阈值都在 10 kW 左右, 高于 40 kW 就同样达到饱和。

(4) 在时间分辨的光谱中存在若干个调制峰。强度最大的第一个峰的出现时间几乎同

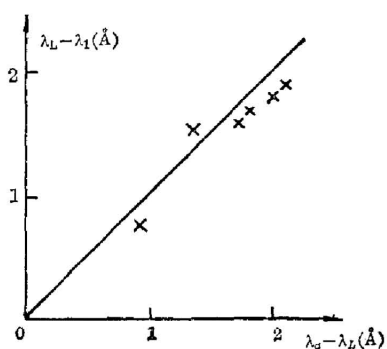


图5  $\lambda_L - \lambda_1$  与  $\lambda_a - \lambda_L$  的关系曲线  
Fig. 5  $\lambda_L - \lambda_1$  vs  $\lambda_a - \lambda_L$   
(X is the experimental point, solid line represents  $2\lambda_L = \lambda_1 + \lambda_a$ )

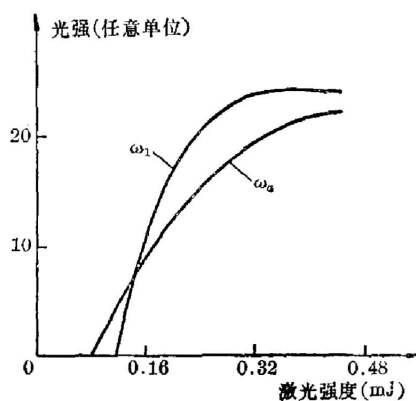


图6 环状光强随入射光强的变化  
Fig. 6 Intensity of the conical emission vs intensity of the incident laser.

激光脉冲的最大值出现时间一致, 一般只有  $2\sim 3\text{ ns}$ 。此外, 第二、第三个峰强度较小, 宽度也较小, 约为  $1\sim 2\text{ ns}$ 。这几个峰的间隔约为  $2\sim 3\text{ ns}$ 。实验证明, 调制的出现及第一个峰的宽度在我们的实验条件下与钠原子密度, 入射光强及波长没有十分明显的关系。但当光强增大时, 第一个峰的幅度的增加明显地大于其余的峰。如果把环挡住, 只测量中心光点的时间行为时, 没有看到调制现象, 它的宽度与激光脉宽相同, 约为  $8\text{ ns}$ 。这种情况表示在图 7 中。

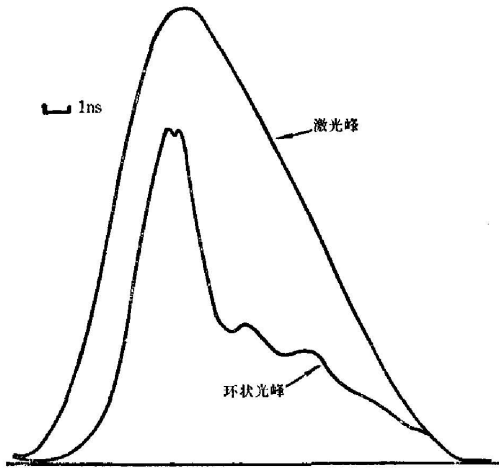


图 7 激光与环状光的时间分辨测量

Fig. 7 Time evolution of the laser and conical emission.

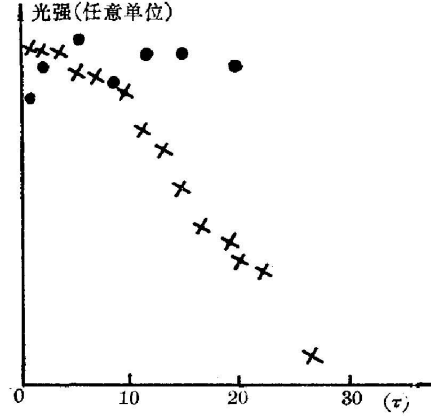


图 8 环状光随缓冲气体气压的变化。× 表示波长为  $\lambda_1$  的辐射, ● 表示扩展的中心光点的辐射

Fig. 8 Intensity of the conical emission vs pressure of the buffer gas. ×: Intensity at cone. ●: Intensity at center.

(5) 上述几个实验结果都是在 6 Torr 的 Ar 作为缓冲气体时得到的。当缓冲气体气压增高时, 波长为  $\lambda_1$  的发光强度明显变小, 到气压升至 25 torr 时几乎完全消失。而中心光点的强度随惰性气体气压的变化不大。

### 三、分析和讨论

当线偏振激光的频率  $\omega_L$  位于  $a$ 、 $b$  两能级之间, 并通过散射介质时, 由于量子相干效应, 瑞利散射将不仅有与激光偏振同方向的分量, 还包含了与激光偏振垂直的分量。其变化规律由 Placzek<sup>[9]</sup> 从理论上导出, 并由 Tam<sup>[10]</sup> 等在实验上证实。瑞利散射强度可由下式表示:

$$\left. \begin{aligned} I_{\perp} &= K \left| \frac{1}{\omega - \omega_b} - \frac{1}{\omega - \omega_a} \right|^2, \\ I_{\parallel} &= K \left| \frac{2}{\omega - \omega_b} + \frac{1}{\omega - \omega_a} \right|^2, \end{aligned} \right\} \quad (1)$$

$I_{\parallel}$ 、 $I_{\perp}$  分别为平行及垂直于激光偏振方向的瑞利散射分量,  $\hbar\omega_a$ 、 $\hbar\omega_b$  分别为 Na 的  $3P_{1/2}$ 、 $3P_{3/2}$  能级的能量,  $K$  是与频率无关的常数。根据 (1) 式, 当  $\omega_L$  在  $5892\sim 5896\text{ \AA}$  之间时,  $I_{\perp} > I_{\parallel}$ , 并在  $5894\text{ \AA}$  附近变得只有  $I_{\perp}$  了。当入射激光较强时以及自聚焦作用使单位面积的光强更高时, 瑞利散射过程成为受激散射过程, 即不再是各向同性地向  $2\pi$  立体角散射,

而主要是向围绕激光传播方向的一个小立体角里散射。这就出现了中心扩展的亮点。这

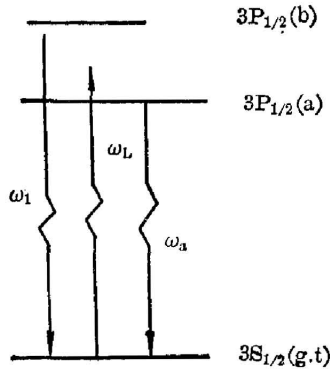


图9 Na 最低的几个能级及四波混频示意图

Fig. 9 Some lower levels of Na, and four wave mixing schema.

样, 当  $\omega_L$  在  $5894 \text{ \AA}$  附近时, 在激光传播方向上就出现了很强的偏振面垂直于入射光的散射光。这个瑞利散射将能诱导出频率为  $\omega_a$  的新的原子的瞬态场<sup>[6]</sup>。为了对时间分辨测量(图7)给出一个定性的结果, 我们根据 M. Leberre-Rausseau 对二能级系统的分析(参照图9)知道, 这个诱导产生的场可表示为:

$$\hat{E}_a(\tau, z) = \hat{E}_R e^{-i\omega_a \tau} \sum_{n=0}^{\infty} i^n \left(\frac{\tau_0 z}{\tau l}\right)^{n/2} \times J_n \left(2\sqrt{\frac{\tau z}{\tau_R l}}\right). \quad (2)$$

其中  $E_R$  为 Rayleigh 场振幅,  $\mu_{ag}$  为  $a, g$  间的偶极矩阵元,  $\tau_R^{-1} = 2\pi\omega_L \mu_{ag}^2 N l / \hbar C$  是超辐射时间,  $\tau_0 = [\tau_R \times (\omega_L - \omega_a)^2]^{-1}$ ,  $l$  为工作区域长度,  $J_n(\cdot)$  为  $n$  阶贝塞尔函数。在本实验条件

下,  $\tau$  是激发光脉冲的持续时间, 约为  $7 \sim 8 \times 10^{-9} \text{ s}$ , 而  $\tau_0$  约为  $10^{-10} \text{ s}$ , 所以  $\tau_0/\tau \ll 1$ , 因此  $E_a(\tau, z)$  随时间及距离的变化可简单地从  $J_0$  中看出。 $J_0$  随  $\tau$  和  $z$  的变化含有明显的调制。因此,  $E_a$  这个场的振幅将随时间有明显的调制。同时, 随  $z$  的改变(即随光在介质中的引进), 频率调制的振幅也改变, 这意味着  $\omega_a$  这个场的频率谱将被加宽, 即在  $3P_{1/2}$  的地方出现一个很宽线宽的辐射。由于在  $5896 \text{ \AA}$  ( $3P_{1/2}$ ) 处原子对光有强的吸收, 在实验上就表现为出现了一个以  $5896.5 \text{ \AA}$  为中心的宽带辐射。与受激发射过程相类似, 从方程(2)中可看出, 诱导产生的光的偏振方向与入射光的偏振方向是相同的。

当介质中存在受激瑞利散射  $\omega_R$  及瞬态场  $\omega_a$  时, 它们的耦合就可能产生第三个场, 其频率为  $\omega_1 = 2\omega_R - \omega_a$ 。这个四波混频过程的发生与介质的非线性极化  $P$  有关,

$$P = \chi^{(3)}(-\omega_1, -\omega_R, \omega_a, -\omega_R) \cdot E_R \cdot E_R \cdot E_a.$$

在只考虑共振项对  $\chi^{(3)}$  的贡献时, 可写为<sup>[11]</sup>: (参照图9)

$$\chi^{(3)}(-\omega_1, -\omega_R, \omega_a, -\omega_R) = \frac{N}{\hbar^3 \epsilon_0} \cdot \bar{\mu}, \quad (3)$$

$$\begin{aligned} \bar{\mu} = \sum_k \frac{1}{2J_g + 1} \rho_{gg}^0 (-1)^{J_g + J_t + K} \sqrt{2K + 1} \begin{Bmatrix} J_g & K & J_t \\ 1 & J_a & 1 \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} J_g & 1 & J_b \\ 1 & J_t & K \end{Bmatrix} \\ \times \langle r_g J_g \| e r \| r_a J_a \rangle \langle r_a J_a \| e r \| \gamma_a J_t \rangle \langle \gamma_t J_t \| e r \| \gamma_b J_b \rangle \langle \gamma_b J_b \| e r \| \gamma_g J_g \rangle \times F(K), \end{aligned} \quad (4)$$

其中:

$$F(K) = \frac{\{[(\mathbf{e}_1^* \times \mathbf{e}_R)^{[K]} \times \mathbf{e}_a]^{[1]} \times \mathbf{e}_R\}^{[0]}}{(\omega_a - \omega_R)(\omega_R - \omega_a)(\omega_b - \omega_a)}, \quad (5)$$

$\mathbf{e}_i$  表示  $i$  场的偏振矢量,  $(\mathbf{e}_i \times \mathbf{e}_j)^{[K]}$  中的上标  $[K]$  表示所取张量的阶数,  $\{\}$  是  $6j$  符号,  $\rho_{gg}^0$  是  $g$  态的粒子密度。由角动量守恒定则可知, 在图9表示的系统中,  $K$  只能取 0、1 两个值, 经计算, (3)式可简化为:

$$\begin{aligned} \chi^{(3)}(-\omega_1, -\omega_R, \omega_a, -\omega_R) \\ = \frac{N e^4}{\hbar^3 \epsilon_0} \frac{1 \langle 0 | r | 1 \rangle^4}{(\omega_a - \omega_R)(\omega_R - \omega_a)(\omega_b - \omega_a)} \times (2 \cos \beta_1 \cos \beta_2 + \sin \beta_1 \sin \beta_2), \end{aligned} \quad (6)$$

式中  $\beta_1, \beta_2$  分别为  $E_1$  及  $E_a$  场的偏振矢量与  $E_R$  偏振矢量的夹角。从(6)式可看出, 四波混

频所产生的  $E_1$  场的偏振方向必须与  $E_0$  场的相同,  $\chi^{(3)}$  才最大。而  $E_0$  场是平行于受激瑞利散射场的, 即  $\beta_2=0^\circ$ , 因此只有当  $\beta_1=0^\circ$  时,  $\chi^{(3)}$  达到最大值。又因受激瑞利散射场的偏振与入射激光场垂直, 所以, 通过四波混频过程就能出现偏振垂直于入射激光偏振的频率为  $\omega_1$  的光。同时  $E_0$  场是时间调制的,  $E_1$  场也必定具有相应的调制。我们知道, 三阶极化率比例于四波混频过程中产生的第四个波 ( $E_1$  波) 的增益, 这意味着与  $E_0$  偏振方向相同的  $E_1$  场能从  $E_R$  及  $E_0$  两个光场中获得最多的能量 (因  $E_1$  和  $E_0$  偏振方向相同时,  $\chi^{(3)}$  最大, 如 (6) 式所示), 并且, 随着光波在介质中引进 (即随  $z$  的增加), 与  $E_0$  同方向的  $E_1$  场越来越强, 其余偏振方向的  $E_1$  场就完全被压制住, 因此, 在实验中, 就表现为出射的光波只有与  $E_0$  同方向的光场了。

四波混频还必须满足位相匹配条件:  $\mathbf{K}_1=2\mathbf{K}_R-\mathbf{K}_0$ 。设  $\theta$  为  $\mathbf{K}_1$  与传播轴的夹角, 则

$$\cos \theta = \frac{1}{4\omega_1\omega_R n_1 n_R} (4n_i^2 \omega_R^2 + n_1^2 \omega_1^2 - \omega_0^2)。$$

在  $N_0$  的 D 双线附近的折射率由 Sellmeier 公式给出

$$n^2(\omega) = 1 + \frac{Ne^2}{4\pi m_e} \left( \frac{f_a}{\omega_a^2 - \omega^2} + \frac{f_b}{\omega_b^2 - \omega^2} \right),$$

通过简单的运算可知, 当  $\theta$  角不大时,  $\theta \propto \sqrt{N}$ , 这与实验得到的结果一致。在实验的波长范围内 ( $5893 \sim 5895.5 \text{ \AA}$ ), 计算得到的匹配角的变化, 当假定  $N \sim 10^{16} \text{ cm}^{-3}$  时, 为  $2.3^\circ \pm 0.3^\circ$ 。因为受激瑞利散射是一个向前的, 并带有一定立体角的辐射, 因此满足匹配条件的波就以一定角向厚度的环状光发射出来。实验中这个角向厚度约为环半径的 30% 左右, 这就使因入射波长改变而出现的匹配角变化不能被观察出来。此外, 实验的匹配角比计算值小一些, 是因为在 Sellmeier 公式中, 我们没有考虑在强激光作用下, 上能级粒子数产生的影响。

环状发光与惰性气体气压的关系, 目前还不能说明, 因为瑞利散射与惰性气体气压的关系是不灵敏的。一种可能是惰性气体气压的增加影响了对  $E_0$  瞬态场的诱导过程。

## 四、结 论

我们用受激瑞利散射及其诱导的瞬态场的四波混频定性地说明了实验上观察到的偏振面垂直于入射激光的环状发光的产生, 它的锥角的大小以及它的时间行为。但还有一些问题仍不清楚, 如惰性气体所起的作用及自聚焦现象对它的影响。同时, 在我们的实验条件下, 光环只出现在向前的散射中, 在向后的散射中几乎看不出有什么明显的环状结构, 而在 Meyer<sup>[5]</sup> 的工作中, 能在前后两个方向上看到环状发光, 其原因也不很清楚。我们认为, 整个过程的完全说明, 必须要考虑当一个强激光入射到一个三能级系统中去产生的结果 (包括可能的自聚焦效应等)。即: 考虑一个三能级, 非共振情况下的 Maxwell-Bloch 方程组。这样就能包含由传播效应引起的原子瞬态共振场, 然后再考虑可能的耦合过程。这方面的工作正在进行中。

## 参 考 文 献

- [1] D. Grischkowsky; *Phys. Rev. Lett.*, 1970, **24**, No. 16 (Apr), 866.  
 [2] D. Grischkowsky, J. A. Armstrong; *Phys. Rev. (A)*, 1972, **A6**, No. 4 (Oct), 1566.

- [3] C. H. Skinner, P. D. Kleiber; *Phys. Rev. (A)*, 1980, **A21**, No. 1 (Jan), 151.  
 [4] G. Brechignac, Ph. Cahuzac *et al.*; *Opt. Commun.*, 1980, **35**, No. 1 (Oct), 87.  
 [5] Y. H. Meyer; *Opt. Commun.*, 1980, **34**, No. 3 (Sep), 439.  
 [6] M. Lebarre-Rousseau, E. Bessayre *et al.*; *Opt. Commun.*, 1981, **36**, No. 1 (Jan), 31.  
 [7] D. Harter, P. Narum *et al.*; *Phys. Rev. Lett.*, 1981, **46**, No. 18 (May), 1192.  
 [8] 何木芝, 张道中等; «物理», (待发表).  
 [9] G. Placzek; «*Handbuch der Radiologie VI (Part II)*» (Akad. Verlag, Leipzig, 1934), 209.  
 [10] A. Tam, C. Au; *Opt. Commun.*, 1976, **19**, No. 2(Nov), 265.  
 [11] M. Yuratic, D. Hanna; *J. Phys. (B)*, 1976, **B9**, No. 5(May), 729.

## Experimental study of the near-resonant stimulated conical emission in Na vapor

ZHANG DAOZHONG MAO LING AND CHEN WENQIN

(*Institute of Physics, Academia Sinica, Beijing*)

(Received 31 March 1983, revised 31 August 1983)

### Abstract

Using linearly polarized dye laser beam which is tuned between the doublet on Na to excite Na vapor, a conical emission with polarization perpendicular to that of the incident laser in the forward direction has been observed. Its spectrum and the time evolution are measured. The relation between this emission and the density of Na, the parameters of laser and the pressure of the buffer gas have been studied. This phenomena may be explained by considering the coupling of Rayleigh scattering and transient field of Na atom.

~~~~~  
(上接第 215 页)

工作也已开展。我国已在一些单位开展色心激光晶体的研制工作, 例如对 KCl:Li、KCl:Na和、KCl:Li:Na 晶体的生长、赋色、转型、光谱和稳定色心等方面作了大量的研制工作。LiF 色心晶体已获得室温、可调谐、脉冲激光输出。开展了 NaF:Mg<sup>2+</sup> 色心激光晶体的研制工作。非线性光学晶体方面, 利用化学键参数与结晶化学相结合的方法, 对钙钛矿型化合物晶体进行了统计分析, 得到了规律性, 对预测新型非线性光学晶体和声光晶体有一定作用。我国已研制出几种新型非线性光学晶体, 例如磺基水杨酸钠、L-AP、偏硼酸钡等。用水热法及助熔剂法已生长出 KTiOPO<sub>4</sub> 晶体。

与会代表建议今后应对已有激光晶体材料攻克质量关, 争取近期内制取一批新晶体投入实际应用; 建议各单位间合理分工、通力协作、互相配合, 促进我国激光新晶体材料的快速发展; 建议探索在已有的晶体材料上掺入新的激活离子的可能性, 通过结构研究和分析, 探索新型晶体材料。

第三届全国激光新晶体材料学术会议, 建议于 1986 年在安徽省召开, 由中国科学院安徽光机所作东道主。

(乙 民、肖 三)